PLASMONDISPERSION IN ALUMINIUM - MAGNESIUM - LEGIERUNGEN

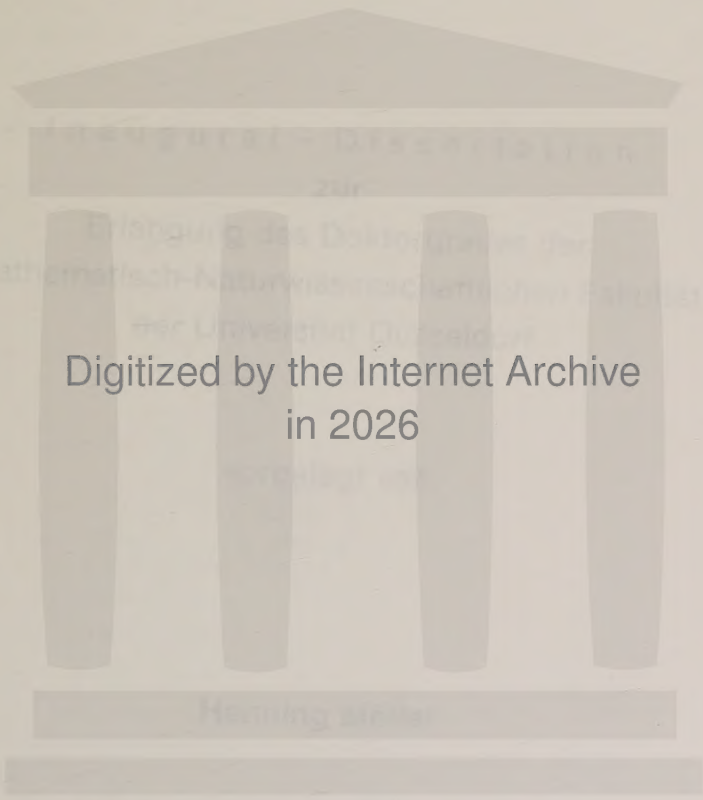
Inaugural - Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Henning Möller

aus Timmendorfer Strand

Düsseldorf 1980



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543910_0048

PLASMONDISPERSION IN ALUMINIUM - MAGNESIUM - LEGIERUNGEN

Inaugural - Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Henning Möller

aus Timmendorfer Strand

Düsseldorf 1980

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Berichterstatter: o. Prof. Dr. A. Otto

2. Berichterstatter: o. Prof. Dr. H.-K. Janssen

Tag der mündlichen Prüfung: 5. 12. 1980

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Theoretische Grundlagen	3
2.1 Inelastische Elektronenstreuung	3
2.2 Dielektrische Funktion einfacher Metalle	5
2.3 Niederenergetische Interbandübergänge	14
2.4 Problemstellung	15
3. Experiment	17
3.1 Apparatur	17
3.1.1 Spektrometer	17
3.1.2 Elektronik	19
3.1.2.1 Steuerelektronik	19
a) Energiespektren	20
b) K-Spektren	21
c) Vier-Winkel-Betrieb	22
d) Kanaleichung	23
3.1.2.2 Registrierelektronik	23
a) Analog-Messung	24
b) Pulszählen	24
3.2 Probenpräparation	25
3.2.1 Phasendiagramm	25
3.2.2 Flashverdampfen	26
3.2.3 Konzentrationsbestimmung	28
4. Meßergebnisse	29
4.1 Auswertung der Dispersionsmessungen	29
4.1.1 Al	30
4.1.2 Mg	31
4.1.3 Al-Mg α-Phase	31
4.1.4 Al-Mg γ-Phase	32
4.1.5 Al-Mg δ-Phase	33

Seite

5. Diskussion 34

5.1 Dispersionskoeffizienten 34
5.2 Reflexionsmessungen 35
5.3 Vergleich mit Rechnungen 38

6. Zusammenfassung 44

Anhang 46

Literaturverzeichnis 51

1. Einleitung

Die Elektronen-Energie-Verlust- (EEV) Spektroskopie ist seit vielen Jahren eine erfolgreiche Methode zur Untersuchung der angeregten elektronischen Zustände von Festkörpern (R 65, G 68, DFRZ 70, Sch 79, R 80). Die Möglichkeit Anregungsenergien $\hbar\omega$ in Abhängigkeit vom Wellenvektorübertrag $\bar{k}$ zu messen, zeichnet dieses Verfahren vor der optischen Absorption und Reflexion aus und stellt es neben die inelastische Röntgenstreuung (Spektroskopie angeregter Zustände) und die winkelabhängige Photoemission (Spektroskopie des Grundzustands). Die mangelnde Energieauflösung der Röntgenstreuung schränkt deren Möglichkeiten jedoch bisher stark ein. Zwei große Schwierigkeiten der EEV-Spektroskopie, die Präparation der Proben (Schichtdicke 100 - 1000 Å) und die Mehrfachstreuprozesse lassen sich durch eine höhere Primärenergie der Elektronen verringern (GRS 75, GSRF 76).

In der vorliegenden Arbeit sind EEV-Messungen an Aluminium-Magnesium-Legierungen durchgeführt worden. Die dominierende Struktur in den EEV-Spektren von Metallen, deren Valenzelektronen gut durch ein Freies Elektronengas (FE) beschrieben werden können, rührt von kollektiven Schwingungen des Elektronengases, den Volumenplasmonen, her (BP 51). Oberflächenplasmonen können bei unseren Messungen immer eindeutig abgetrennt werden und bleiben unberücksichtigt.

Die Plasmondispersion, d.h. die Plasmonenergie $\hbar\omega_p$ in Abhängigkeit vom Wellenvektor $\bar{K}$ in Aluminium-Magnesium-Legierungen ist in dieser Arbeit zum ersten Mal gemessen worden. Die experimentell bestimmte Dispersion $\hbar\omega_p(\bar{K})$ erlaubt es, grundlegende Modelle zum Verhalten der Valenzelektronen in einfachen Metallen zu überprüfen.

Das Ergebnis der Messungen zeigt, daß niederenergetische Interbandübergänge, wie sie in realen Metallen durch das Ionengitter hervorgerufen werden, die Plasmondispersion bei kleinen Wellenvektoren $\bar{K}$ beeinflussen und zu einer Abweichung vom Freien-Elektronengas-Verhalten führen. Die Dispersion bei kleinen $\bar{K}$ in einfachen Metallen wird also von der speziellen Bandstruktur beeinflußt und ist keine allgemeine Eigenschaft des Freien Elektronengases. Dies muß beim Vergleich mit der Theorie berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 2.1).

Im Kapitel 2 werden einige Grundlagen zur inelastischen Elektronenstreuung, zur Dielektrizitätskonstanten (DK) des Freien Elektronengases und zu niederenergetischen Interbandübergängen in einfachen Metallen vorgestellt. Kapitel 3 beschreibt die experimentellen Voraussetzungen, gegliedert nach apparativem Aufbau und Probenpräparation. Die Meßergebnisse sind in Kapitel 4 gezeigt. Kapitel 5 enthält die Diskussion der Ergebnisse. In Abschnitt 5.2 wird auf die zusätzlich durchgeführten optischen Reflexionsmessungen eingegangen. Eine Zusammenfassung findet sich in Kapitel 6.

2. Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden zuerst die Grundlagen der inelastischen Elektronenbeugung behandelt (2.1), dann folgt ein Abschnitt (2.2) über die dielektrische Funktion in einfachen Metallen (siehe auch P 64 und PW 73). Im Teil 2.3 werden niederenergetische Interbandübergänge, die in realen Metallen die Ergebnisse des FE modifizieren, behandelt. Am Schluß des Kapitels wird auf die Problemstellung aufgrund früherer Arbeiten eingegangen.

2.1 Inelastische Elektronenstreuung

Mit Hilfe der EEV-Spektroskopie ist es möglich, direkt Information über die ω- und K-abhängige Dielektrizitätskonstante zu gewinnen. Die grundlegende Beziehung, die die Verbindung von Experiment und Theorie herstellt, lautet (FP 55, H 55):

$$W_{El}\ (\ \hbar\omega,\Omega(k))\ d\hbar\omega\ d\Omega\ =\ \frac{e^2}{\pi\ h\ v}\ \frac{D}{k^2}\ Im\frac{-1}{\varepsilon(k,\omega)}\ d\hbar\omega\ d\Omega \qquad (2.1)$$

(siehe Abb. 2.1)

Auf der linken Seite der Gleichung (2.1) steht die Wahrscheinlichkeit für die Streuung von Elektronen mit dem Energieverlust $\hbar\omega$ in das Raumwinkelelement $d\Omega$. D bezeichnet die Schichtdicke der dünnen Probe, e bedeutet die Elementarladung und $\bar{v}$ die Geschwindigkeit der einfallenden Elektro-

nen. Es gilt (vergleiche Abb. 2.1)

$$k^2 = k_\perp^2 + k_\parallel^2 \qquad (2.2)$$

für kleine Streuwinkel d.h. $|\bar{k}| \ll |\bar{k}_0|$ ergeben sich aus Impuls- und Energieerhaltung die Beziehungen (S 79 : S.282)

$$k_\perp = k_0 \cdot \theta \qquad (2.3)$$

und

$$k_\parallel = k_0 \cdot \frac{\hbar\omega}{2 \cdot E_0} =: k_0 \theta_E \qquad (2.4)$$

Wobei $E_0 = 30$ keV die Primärenergie der Elektronen ist und $k_0 = 90\ \text{Å}^{-1}$ der zugehörige Wellenvektor.
Für $\theta > \theta_E$ d.h. nicht allzu kleine Streuwinkel θ vereinfacht sich die Gl. (2.2) zu

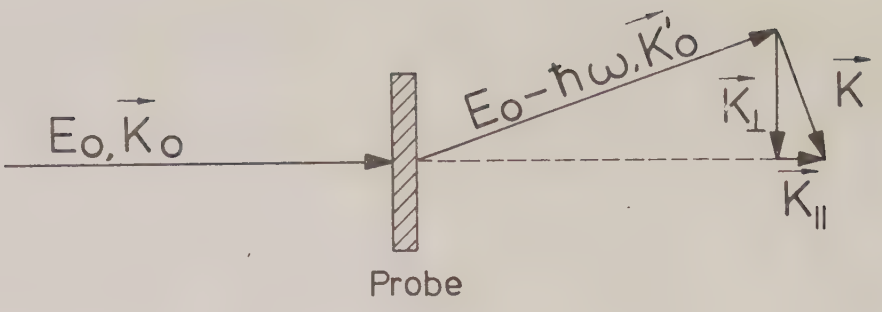
$$k = k_\perp = k_0 \cdot \theta \qquad (2.5)$$

und man erhält eine lineare Beziehung zwischen Wellenvektorübertrag K und Streuwinkel θ.

Mit inelastischer Röntgenstreuung lassen sich grundsätzlich die gleichen Informationen gewinnen, denn es gilt

$$W_{RÖ}(\hbar\omega, \Omega(k))\, d\hbar\omega\, d\Omega \sim k^2\, \mathrm{Im}\frac{-1}{\varepsilon(k,\omega)}\, d\hbar\omega\, d\Omega \qquad (2.6)$$

(PPE 74). Dem Vorteil der Intensitätsabhängigkeit proportional K^2 steht jedoch die schlechtere Energieauflösung und die Reabsorption entgegen. Unsere Messungen wären deshalb mit



Wahrscheinlichkeit W für Elektronenstreuung mit Energieverlust $\hbar\omega$ und Wellenvektorübertrag $\vec{K}$:

$$W(\vec{K},\hbar\omega) \sim \frac{1}{K^2} \operatorname{Im} \frac{-1}{\varepsilon(\vec{K},\hbar\omega)}$$

Abb. 2.1: Streugeometrie und grundlegende Beziehung für die inelastische Elektronenstreuung

Röntgenstreuung nicht möglich gewesen. Durch optische Absorption oder Reflexion kann nur $\varepsilon(\bar{k}\approx 0,\omega)$ bestimmt werden, so daß insgesamt gesehen die EEV-Spektroskopie eine herausragende Methode ist, um die Dielektrische Funktion $\varepsilon(\bar{k},\omega)$ über einen weiten Energie- und Wellenvektorbereich zu erhalten.

2.2 Die dielektrische Funktion $\varepsilon(\bar{k},\omega)$ in einfachen Metallen

Die Streuwahrscheinlichkeiten (Gleichung(2.1)) für inelastische Elektronenstreuung sind direkt mit der Dielektrischen Funktion $\varepsilon(\bar{k},\omega)$ verknüpft. Die Theorie der DK ist deswegen von grundlegender Bedeutung für die Interpretation der Meßergebnisse. Ausgehend vom Freien Elektronengas soll daher die Theorie der DK, wie sie für einfache Metalle entwickelt worden ist, in den Grundzügen wiedergegeben werden. Ein Überblick ist bei Platzmann und Wolff zu finden (PW 73).

Das FE wird als erste Näherung für die Beschreibung der Valenzelektronen einer großen Gruppe von Metallen angesehen. Dieses Modell dient daher als Ausgangspunkt für weitergehende Versuche einer theoretischen Beschreibung in der Pseudopotentialtheorie (HCW 70), die die Auswirkungen des Ionengitters im Metall als Störung des Freien Elektronengases berücksichtigt. D.h. in einer zweiten Stufe werden lokale Feldeffekte, durch die gitterperiodische Modulation der Elektronendichte verursacht, in der Pseudopotential-RPA berechnet. Darüberhinausgehende Diskrepanzen zwischen Experiment und Theorie lassen dann Rückschlüsse auf den Einfluß von Elektronen-Austausch-

und Korrelationseffekten zu, die von der RPA nicht erfaßt werden.

Die dielektrische Funktion beschreibt die Antwort eines Festkörpers auf ein schwaches äußeres Feld

$$\Phi_{ext}(\bar{k},\omega) = \frac{4\pi}{k^2} \rho_{ext}(\bar{k},\omega) \qquad (2.7)$$

wie es z.B. von einem schnellen Elektron erzeugt wird. Im FE reicht es aus, eine Fourierkomponente zu betrachten. (Wellenvektor $\bar{K}$, Frequenz ω). Im Anschluß an die übliche Schreibweise sind die Fouriertransformierten der Funktionen von Ort und Zeit dargestellt. Die Störung $\Phi_{ext}(\bar{k},\omega)$ ruft ein resultierendes Gesamtfeld

$$\Phi_{gesamt}(\bar{k},\omega) = \frac{4\pi}{k^2} (\rho_{ext}(\bar{k},\omega) + \rho_{ind}(\bar{k},\omega)) \qquad (2.8)$$

hervor, wobei sich die von der Störung induzierte Ladungsdichte darstellt. Die dielektrische Funktion ist dann definitionsgemäß:

$$\Phi_{gesamt}(\bar{k},\omega) = \frac{\Phi_{ext}(\bar{k},\omega)}{\varepsilon(\bar{k},\omega)} \qquad (2.9)$$

Die Berechnung von $\varepsilon(\bar{k},\omega)$ führt somit zur Frage der Bestimmung von $\rho_{ind}(\bar{k},\omega)$

Nimmt man in erster Näherung an, daß jedes Elektron sich unabhängig von den anderen nur durch das äußere Feld getrieben bewegt, so ergibt sich für die induzierte Ladungsdichte.

$$\rho_{ind}(\bar{k},\omega) = \chi_0(\bar{k},\omega) \cdot \Phi_{ext}(\bar{k},\omega) \qquad (2.10)$$

Hierbei muß die Polarisierbarkeit χ_0 von freien, nicht miteinander wechselwirkenden Elektronen eingesetzt werden

$$\chi_0(\bar{k},\omega) = e^2 \sum_{\bar{p}} \frac{f(\bar{p}) - f(\bar{p}+\bar{k})}{\omega - \frac{(\bar{p}+\bar{k})^2}{2m} + \frac{p^2}{2m} + i\delta} \qquad (2.11)$$

(PW 73, S.39) f bezeichnet die Fermiverteilung, $\bar{p}$ und $\bar{k}$ sind Wellenvektoren und δ ist ein Einschaltparameter für die äußere Störung Φ_{ext}.

In dieser sogenannten Hartree-Näherung treten nur Einzelelektronenanregungen auf (Abb.2.2) die wegen der Fermiverteilung auf den schraffierten Bereich beschränkt sind. Wegen der fehlenden Wechselwirkung der Elektronen untereinander gibt es keine Plasmonen.

Will man diese Näherung verbessern, so muß die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen untereinander, deren lang reichweitiger Anteil zu den Plasmaschwingungen führt, berücksichtigt werden. In der RPA geschieht dies dadurch, daß die induzierte Ladungsdichte $\rho_{ind}(\bar{k},\omega)$ als Antwort auf das gesamte Feld $\Phi_{gesamt}(\bar{k},\omega)$ angesehen wird:

$$\rho_{ind}(\bar{k},\omega) = \chi_0(\bar{k},\omega) \cdot \Phi_{gesamt}(\bar{k},\omega) \qquad (2.12)$$

Dabei besteht das gesamte Feld $\Phi_{gesamt}(\bar{k},\omega)$ aus dem äusseren und dem induzierten Feld $\Phi_{ind}(\bar{k},\omega)$

$$\Phi_{gesamt}(\bar{k},\omega) = \Phi_{ext}(\bar{k},\omega) + \Phi_{ind}(\bar{k},\omega) \qquad (2.13)$$

Das induzierte Feld hängt mit der Ladungsdichte $\rho_{ind}(k,\omega)$ über die Poissongleichung selbstkonsistent zusammen.

Für ein Elektronengas ohne Ionengitter, ein homogenes Elektronengas, führt dies zur dielektrischen Funktion nach Lindhard (L54):

$$\varepsilon_L(\bar{k},\omega) = 1 - \frac{4\pi}{k^2} \chi_0(\bar{k},\omega) \qquad (2.14)$$

(siehe auch Abschnitt 5.3 Für das Anregungsspektrum in der RPA erhält man damit die Abb.2.2 (PW 73).
Neben dem Bereich der Einzelelektronenanregung (Elektron-Loch-Kontinuum gibt es den durch

$$\varepsilon_L(\bar{k},\omega) = 0 \qquad (2.15)$$

bestimmten Plasmonzweig. Durch Reihenentwicklung erhält man aus 2.15 für kleine K die bekannte Beziehung

$$\omega_p(k) = \omega_p(0) + \frac{\hbar}{m} \alpha \cdot k^2 + \ldots \qquad (2.16)$$

Hier bezeichnet ω_p die Plasmonfrequenz, m die Elektronenmasse und es gilt

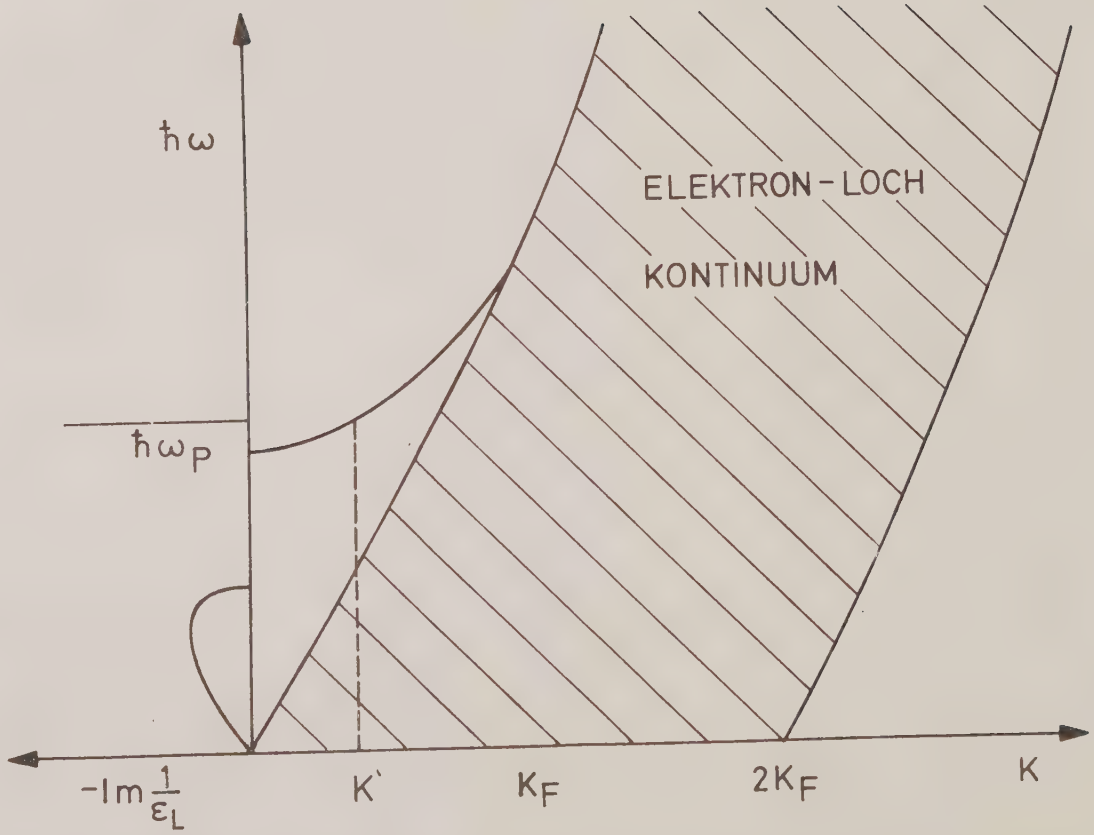


Abb. 2.2: Anregungsspektrum für ein Freies Elektronengas in der RPA. Links ist das
[illegible] Verlustspektrum gezeichnet.

$$\alpha = \frac{3}{5} \frac{E_F}{\hbar\omega_p(0)} \qquad (2.17)$$

wobei E_F die Fermienergie ist. Der Dispersionskoeffizient α wird zum Vergleich mit der Theorie herangezogen. Er hängt von der Elektronendichte ab. Durch Ersetzen von E_F erhält man

$$\alpha \sim (\hbar\omega_p(0))^{\frac{1}{3}} \qquad (2.18)$$

Diese Beziehung kann experimentell überprüft werden.

Ein weiterer Schritt zur Verbesserung des Ausgangsmodells vom Freien Elektronengas nicht wechselwirkender Elektronen besteht in der Berücksichtigung des periodischen Ionengitters. Mit Hilfe des Gitterpotentials kann die Dämpfung der Plasmonen erklärt und in der Pseudopotential-Näherung berechnet werden (S76, S77a, S78a). Im Rahmen der RPA ist das Plasmon im FE nicht gedämpft (vergl. Abb.2.2) Die Berücksichtigung des periodischen Ionenpotentials in einfachen Metallen im Rahmen der Pseudopotential-Näherung kann jedoch die gemessenen Linienbreiten erklären.

Allgemein führt das periodische Gitterpotential zu Energiebändern und Blochwellenfunktionen. Im Anregungsspektrum treten jetzt zusätzlich Interbandübergänge auf. Um unter Berücksichtigung des periodischen Gitters die Dielektrische Funktion

in der RPA zu erhalten, muß man die Polarisierbarkeit $\chi_0(\bar{k},\omega)$ (Gl. 2.12) ersetzen durch die Polarisierbarkeit für nicht wechselwirkende Blochelektronen

$$\chi_0^B(\bar{k}+\bar{G},\bar{k}+\bar{G}',\omega) =$$

$$e^2 \sum_{\bar{p},l,l'} \frac{\langle l,\bar{p}|e^{-i(\bar{k}+\bar{G})\bar{r}}|l',\bar{p}+\bar{k}\rangle\langle l',\bar{p}+\bar{k}|e^{i(\bar{k}+\bar{G}')\bar{r}}|l,\bar{p}\rangle}{\omega + E(l,\bar{p}) - E(l',\bar{p}+\bar{k}) + i\delta}$$

$$(f(l,\bar{p}) - f(l',\bar{p}+\bar{k})) \qquad (2.19)$$

(PW 73). Es bedeuten $\bar{G}$ und $\bar{G}'$ reziproke Gittervektoren, l und l' Bandindizes, die Wellenvektoren $\bar{p}$ werden über die erste Brioullinzone summiert, $\langle l,\bar{p}|$ bezeichnen Blochzustände und $f(l,\bar{p})$ bzw. $E(l,\bar{p})$ sind deren Besetzungszahlen bzw. Energieeigenwerte. Eine äußere Störung $\Phi_{ext}(\bar{k},\omega)$ führt jetzt zu induzierten Ladungsdichteschwankungen $\rho_{ind}(\bar{k}+\bar{G},\omega)$ und für beliebige $\bar{G}$ gilt:

$$\rho_{ind}(\bar{k}+\bar{G},\omega) = \sum_{\bar{G}'} \chi_0^B(\bar{k}+\bar{G},\bar{k}+\bar{G}',\omega)\cdot\Phi_{gesamt}(\bar{k}+\bar{G}',\omega) \qquad (2.20)$$

Damit ergibt sich die verallgemeinerte DK nach Adler und Wiser (A 62, W 63):

$$\varepsilon(\bar{k}+\bar{G},\bar{k}+\vec{G}',\omega) = \delta_{\bar{G}\vec{G}'} - \frac{4\pi}{|\bar{k}+\bar{G}|^2} \chi_0^B(\bar{k}+\bar{G},\bar{k}+\vec{G}',\omega) \qquad (2.21)$$

An die Stelle der Lindhard DK (Gleichung (2.14)) tritt jetzt eine doppelt unendliche Matrix, aus der sich die makroskopische DK nach Inversion ergibt

$$\frac{1}{\varepsilon_M(\bar{k},\omega)} = \left(|\varepsilon(\bar{k}+\bar{G},\bar{k}+\vec{G}',\omega)|^{-1} \right)_{\bar{G}=0,\bar{G}=0} \qquad (2.22)$$

d.h. das erste Element($\bar{G}$=0,$\bar{G}$=0)der invertierten Matrix ist gleich der reziproken makroskopischen DK. Sind die Außerdiagonalelemente von Null verschieden, dann gilt insbesondere

$$\varepsilon_M(\bar{k},\omega) \neq 1 - \frac{4\pi}{k^2} \chi_0^B(\bar{k},\bar{k},\omega) . \qquad (2.23)$$

in diesem Fall muß die Matrixinversion ausgeführt werden, was bei der Mitnahme von genügend vielen reziproken Gittervektoren einen hohen Rechenaufwand bedeutet (LCC 75).

Die Außerdiagonalelemente, die die Dichtevariation des Elektronengases durch das Ionengitter beschreiben, sind für die einfachen Metalle klein gegen die Diagonalelemente. Deshalb wird in der Pseudopotential-Näherung das schwache effektive Gitterpotential als Störung behandelt und es ergibt sich für die DK (W 63, S 76)

$$\varepsilon_M(\bar{k},\omega) = \varepsilon(\bar{k},\bar{k},\omega) - \sum_{\bar{G}\neq 0}^{\prime} \frac{\varepsilon(\bar{k},\bar{k}+\bar{G},\omega)\cdot\varepsilon(\bar{k}+\bar{G},\bar{k},\omega)}{\varepsilon_L(|\bar{k}+\bar{G}|,\omega)} \qquad (2.24)$$

wobei gelten muß $\bar{k} < \frac{\bar{G}_0}{2}$, mit dem kleinsten reziproken Gittervektor $\bar{G}_0$

Der erste Summand ist die Verallgemeinerung der Lindhard DK nach Ehrenreich und Cohen (EC 59), der zweite berücksichtigt die vom Ionengitter induzierte Dichtevariation des Elektronengases, die zu den sogenannten lokalen Feldern $\Phi_{ind}(\bar{k}+\bar{G},\omega)$ führen.

Diese Näherung ist mit guten Ergebnissen zur Berechnung von Plasmondispersion (S 76, S 78c) und Linienbreiten (S 76, S 77) angewendet worden.

Die RPA berücksichtigt die Wechselwirkung der Elektronen untereinander in einer gemittelten Weise. Jedes Elektron bewegt sich unabhängig von den anderen in einem effektiven Potential. Bei mittleren Elektronendichten, wie sie in realen Metallen auftreten ist dies keine gute Näherung mehr, da kurzreichweitige Elektronenkorrelationen auftreten. Das Versagen der RPA wird deutlich an der Paarkorrelationsfunktion g(r) (P 63 S.73). Sie gibt die Wahrscheinlichkeit an, ein Elektron im Abstand r eines zweiten Elektrons zu finden. In der Hartree-Näherung (Gleichung (2.1)) ist g(r) = const. = 1. Es gibt keine Korrelation zwischen den Positionen der Elektronen. In der RPA wird die per Definition positiv definite Funktion g für

kleine r bei metallischen Dichten negativ (GF 59, H 65), die Korrelation wird gewissermaßen überschätzt.

Eine Korrektur, die Korrelations- und Austauscheffekte, die nicht in der RPA berücksichtigt sind, einbezieht wurde erstmals von Hubbard vorgeschlagen (H 55). Für die induzierte Ladungsdichte setzt er an

$$\rho_{ind}(\bar{k},\omega) = \chi_0(\Phi_{ext}(\bar{k},\omega) + \Phi_{ind}(\bar{k},\omega) - G(\bar{k})\rho_{ind}(\bar{k},\omega)) \tag{2.24}$$

Mit

$$G(k) = \frac{1}{2} k^2/ (k_F^2 + k^2) \tag{2.26}$$

ergibt sich die DK ε_H nach Hubbard

$$\varepsilon_H(\bar{k},\omega) = 1 - \frac{-\frac{4\pi}{k^2}\chi_0(\bar{k},\omega)}{1 - G(k)\frac{4\pi}{k^2}\chi_0(\bar{k},\omega)} \tag{2.27}$$

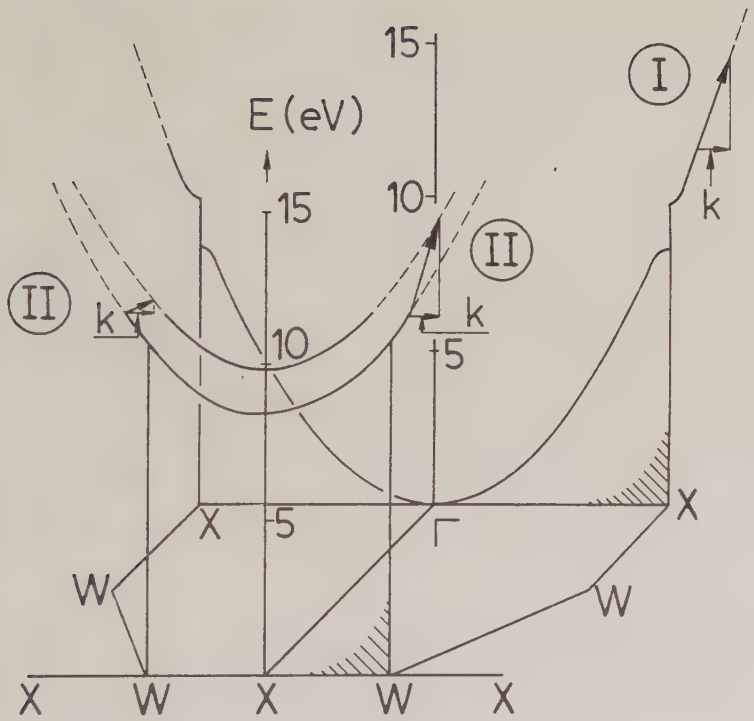
Für K = 0 ergibt sich in der Hubbard-Korrektur für das homogene Elektronengas wieder die Lindhard DK.
Da eine exakte Berechnung von G(k) bisher nicht möglich war, ist bis heute eine Vielzahl von Ansätzen für die Funktion $G(\bar{k})$ angegeben worden. Insbesondere wurde die Frequenzabhängigkeit $G(\bar{k}\omega)$ berücksichtigt (TW 70) und selbstkonsistente

Verfahren zur Bestimmung von $G(\bar{k},\omega)$ angegeben (ST LS 68). Ein Überblick ist bei Shaw (S 70), Hedin und Lundqvist (HL 71) und Kugler (K 75) zu finden.

Rechnungen zur Plasmondispersion in Al unter Einbeziehung von Korrelations- und Austauschkorrekturen sind von Bross (B 78) in der Pseudopotential-Näherung und von Devreese et.al. (DBL 79) unter der Annahme eines homogenen Elektronengases ausgeführt worden. Die Ergebnisse von Bross sind in Abschnitt 5.3 gezeigt. Devreese berechnet bei kleinen K nur wenige Werte, so daß ein Vergleich schwierig ist.

2.3 Niederenergetische Interbandübergänge

Zu den realen Metallen, deren Valenzelektronen sich gut durch ein Freies Elektronengas beschreiben lassen, gehören solche, in denen keine Interbandübergänge im Bereich der Plasmaschwingungen existieren. Am Beispiel des Aluminiums gibt es jedoch seit langem Untersuchungen, daß auch hier - in einem Klassischen FE-Metall - niederenergetische Interbandübergänge vorkommen (EPS 63, MM 72, OS 75). Die Pseudopotentiale U_{111} und U_{200} führen im Al zu einer Aufspaltung 2 U der Bänder am Rand der Brillouin-Zone (siehe Abb.2.3) Zusätzlich zu Intrabandübergängen sind dann Übergänge zwischen den nahezu parallel verlaufenden Bändern möglich (P 66). Diese sogenannten Parallel-Band-Übergänge überwiegen die ebenfalls auftretenden "normalen" Interbandübergänge deutlich (AS 71).



$$\text{(I)} : \Delta E = \frac{\hbar^2 \cdot K_F}{m} \cdot K$$

$$\text{(II)} : \Delta E = 2U_{200} \pm \frac{\hbar^2}{2m}\left(2\left(K_F^2 - \left(\frac{2\pi}{a}\right)^2\right)^{\frac{1}{2}} \cdot K + K^2\right)$$

Abb.2.3: Vereinfachtes Schema der ersten Brillouinzone von Aluminium. Intra- (I) und Inter- (II) Bandüberübergänge sind für die <100> -Richtung eingezeichnet. In erster Näherung erhält man die angegebenen Dispersionsrelationen. Fermiwellenvektor k_F , Gitterkonstante a , Pseudopotential U_{200} zum reziproken Gittervektor (200).

Letztere sind z.B. von Butcher (B 51) beschrieben, tragen aber wegen geringer kombinierter Zustandsdichte wenig zur Absorption bei.

Die Parallel-Band-Übergänge sind für Aluminium durch optische Reflexions- und Absorptionsmessungen seit längerem bekannt (P 60, EP 62). Auch bei anderen mehrwertigen Metallen wie Zink, Cadmium (LT 64) und Magnesium (GL 67) sind entsprechende Strukturen aus optischen Messungen bekannt. Eine Bandstrukturrechnung für Mg zeigt das Aufspalten von Bändern gegenüber dem Freien Elektronengas ähnlich dem Aluminium (AIRD 78).

2.4 Problemstellung

Plasmondispersionsmessungen sind ein guter Test für grundlegende, über die RPA hinausgehende theoretische Modelle für einfache Metalle oder Halbleiter. Seit vielen Jahren sind EEV-Experimente an Alkalimetallen und wegen der leichteren experimentellen Handhabbarkeit auch an Aluminium und Magnesium durchgeführt worden (R 80). Kloos hat an Al bereits 1973 Abweichungen von der quadratischen Plasmondispersion nach Gleichung (2.16) gefunden (K 73).Eine erste Deutung schlugen Petri und Otto vor (PO 76). Im Zusammenhang mit Dispersionsmessungen von Interbandübergängen an einkristallinem Aluminium deuteten sie die Abweichung als Interbandeffekt. 1978 wies Sturm (S 78b) darauf hin, daß die quadratische Näherung (Gl. (2.16))

nur für kleine K gültig sei.

Die explizite Ausrechnung der Plasmondispersion nach der Lindhard DK $\varepsilon_L(\bar{k},\omega)$ ergibt eine Abweichung von den Werten nach Gl. (2.16) für $K^2 > 0.1\, K_F^2$, wobei K_F den Fermiwellenvektor bezeichnet (S 78a).

Nach Sturm sollte diese Abweichung für alle FE-Metalle in ähnlicher Weise auftreten.

Wir wollten durch Dispersionsmessungen an Al-Mg-Legierungen klären, ob die Abweichung von Gleichung (2.16) bei Aluminium ein allgemeiner Effekt des Elektronengases ist, oder ob Interbandübergänge zu einer Abweichung von der quadratischen Dispersion führen.

3. Experiment

3.1 Apparatur

Eine ausführliche Beschreibung des Elektronenspektrometers liegt in den Arbeiten von Höhberger (H 75) und Petri (P 77) vor. Hier soll deswegen nur auf den prinzipiellen Aufbau eingegangen werden.

3.1.1 Spektrometer

Abbildung 3.1 gibt einen Überblick über den elektronenoptischen Aufbau. Sämtliche Elemente befinden sich in einem Edelstahlrezipienten, der von zwei Turbomolekularpumpen bis zu einem Druck im 10^{-7} mbar-Bereich evakuiert wird.

Der Elektronenstrahl mit einer Primärenergie E_0 = 30 KeV und der energetischen Halbwertsbreite von 0.6 - 0.8 eV wird in einem Dreielektrodensystem E erzeugt. Der Wellenvektor der Elektronen beträgt

$$k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_e} = 90\ \text{Å}^{-1} \qquad (3.1)$$

mit der de Broglie-Wellenlänge λ_e = 0.07 Å . Mittels einer elektrostatischen Linse L werden die Elektronen durch die Probe P auf den Eintrittsspalt des Energieanalysators EA fokussiert. Der Sechsfach-Probenhalter ist zum Tempern der

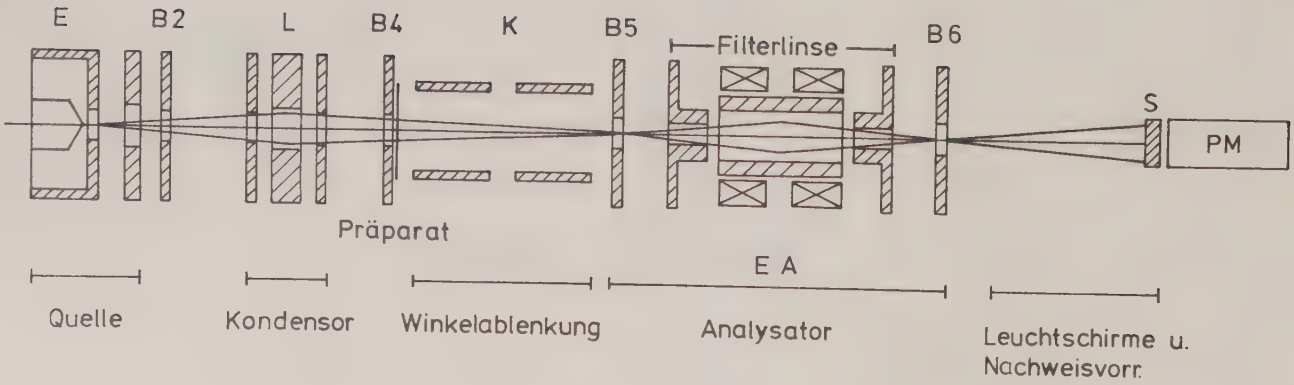


Abb. 3.1: Elektronenoptischer Strahlengang des Spektrometers. Nähere Erklärung im Text (Abschnitt 3.1.1)

Proben bis 350°C heizbar. Zwischen Probenhalter und Energieanalysator passiert der Strahl ein Ablenksystem, mit dem Elektronen, die in einen Winkel θ gestreut worden sind, zurück in den Energieanalysator gelenkt werden können (siehe Abb.3.2). Die Ablenkung erfolgt elektrostatisch in zwei Plattenpaaren, die nacheinander durchlaufen werden. Bei einem festen, durch die Geometrie und die Elektronenenergie bestimmten Verhältnis V der Spannungen U_k bzw. $-V \cdot U_k$ an den beiden Kondensatorplatten ist der Ablenkwinkel proportional zur Spannung U_k (P 77)

$$\theta = \text{const} \cdot U_k \qquad (3.2)$$

Wegen $K = K_o \cdot \theta$ (siehe Gl. (2.3)) entspricht dies einem definierten Wellenvektor K. Die Winkelhalbwertsbreite des Elektronenstrahls aufgrund der verwendeten Blenden entsprach einer Halbwertsbreite im K-Raum von $K = 0.05\ \text{Å}^{-1}$.

Die aus dem Energieanalysator austretenden Elektronen sind nach Energieverlust $\hbar\omega$ und Wellenvektorübertrag K selektiert. Sie treffen auf einen Plastikszintillator S (NE 104 der Fa. Nuclear Enterprise), dessen Lichtblitze von einem Photomultiplier PM registriert werden.Die weitere Signalverarbeitung wird in Abschnitt 3.1.2.2 beschrieben.

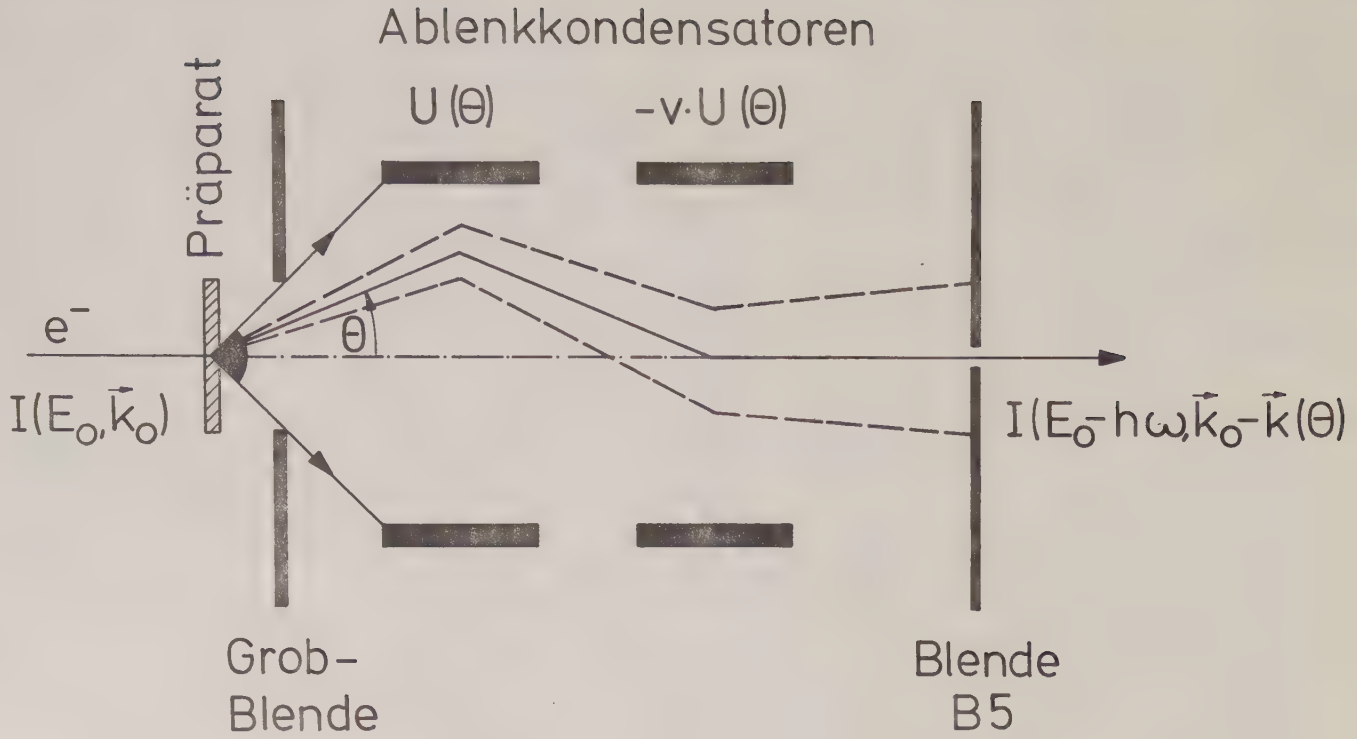


Abb. 3.2: Ablenkeinheit zur Selektion des Wellenvektors k (siehe 3.1.2.1)

3.1.2 Elektronik

3.1.2.1 Steuerelektronik

Um die Auswirkungen von unvermeidlichen Strahlinstabilitäten durch Spannungsschwankungen, magnetische Störfelder, Aufladungen, Hochspannungsüberschläge etc.auf die Zählraten zu verringern, wurde die Registrierelektronik vollkommen umgebaut. An Stelle des herkömmlichen Verfahrens, ein gesamtes Spektrum in einigen Minuten aufzunehmen, tritt jetzt die Möglichkeit, ein Spektrum in einigen Millisekunden zu durchlaufen. Viele solcher Spektren werden addiert, bis eine ausreichende Statistik erreicht ist.

Die Steuerung des Spektrometers und die Speicherung der Spektren wird von einem Vielkanalanalysator (MCA) 1070 der Fa. Nicolet mit zugehöriger peripherer Elektronik geleistet. In Abbildung 3.3 ist ein Blockschaltbild wiedergegeben. Wegen der speziellen Anforderungen an die Geräte war größtenteils ein Eigenbau unumgänglich. Mit der im Folgenden beschriebenen Steuerelektronik ist es insbesondere möglich, wahlweise Energiespektren (Zählraten als Funktion des Energieverlustes $\hbar\omega$) oder K-Spektren (Zählraten als Funktion des Wellenvektors K) aufzunehmen. Energiespektren können bei bis zu vier verschiedenen Wellenvektoren K gleichzeitig gemessen werden.

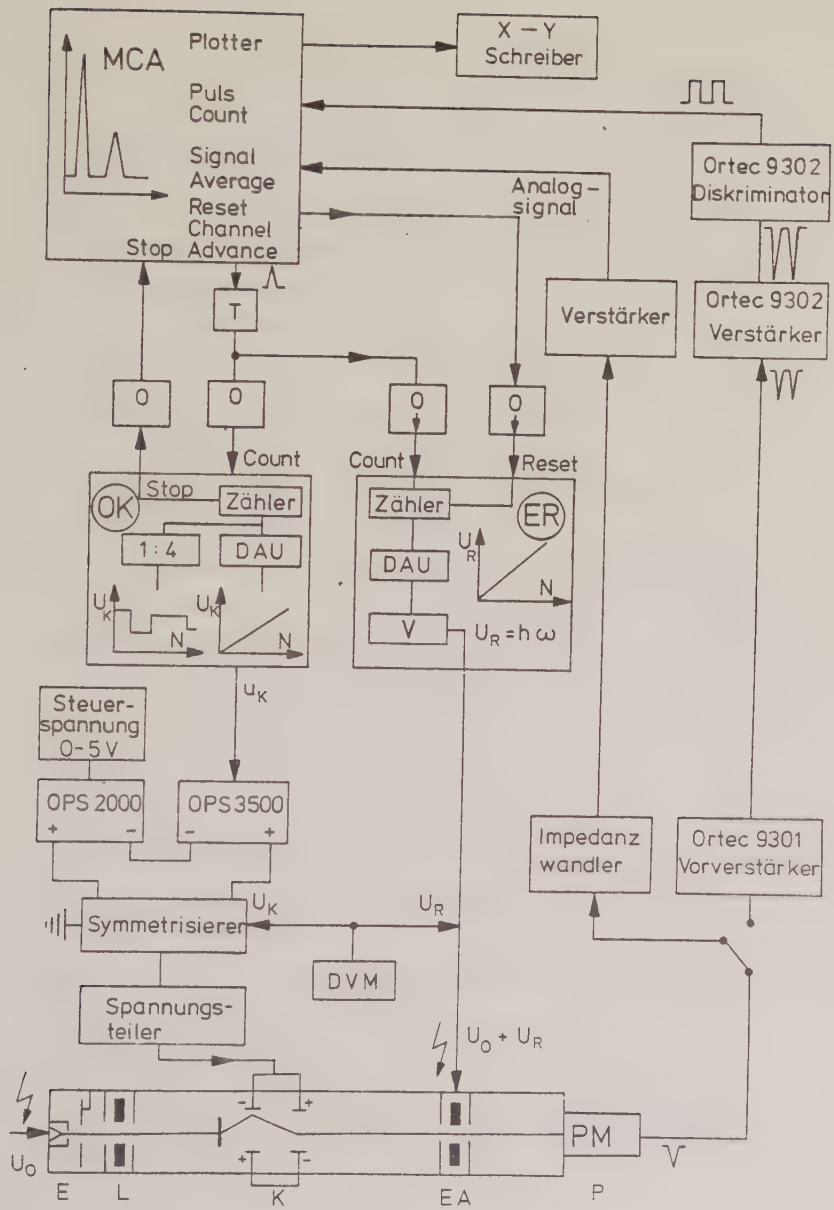


Abb. 3.3: Blockschaltbild der Steuer- und Registrierelektronik. Nähere Erläuterung im Text.

a) Energiespektren

Die Kanalfortschaltimpulse (Channel Advance) des MCA werden bei fest eingestellter Winkelablenkung im Zähler der Energieanalysator-Rampe (ER) gezählt (vergl. Abb.3.3). Es ist dazu notwendig, die Nadelimpulse des MCA (Pulsbreite $\tau = 1\ \mu s$) mit Hilfe einer Monostabilen Kippschaltung (T) auf Pulsbreiten von $t > 12\mu s$ zu verlängern. Ein Optokoppler (O) sorgt für eine galvanische Trennung zwischen dem auf Erdpotential liegenden MCA und der Rampe ER, die auf einem Potential von - 30 KV liegen muß.

Ein Digital-Analog-Wandler (DAU) liefert eine der erreichten Kanalzahl N proportionale Rampenspannung U_R. Für den von uns verwendeten Energieanalysator, eine modifizierte Hartlsche Filterlinse gilt (P 77):

$$e \cdot U_R = \hbar\omega \qquad (3.3)$$

so daß ein linearer Zusammenhang zwischen Energieverlust $\hbar\omega$ und Kanalzahl N besteht.

Außer dem von uns benutzten Spannungsbereich von 0 - 50 V sind die Bereiche 0 - 10 V und 0 - 100 V einstellbar. Um z.B. die Nullinie ausblenden zu können, kann eine variable Zusatzspannung addiert werden, die den registrierten Abschnitt des Spektrums um maximal 15 eV zu höheren Energien verschiebt.

Je nach der geforderten Energieauflösung kann das Spektrum in 512, 1024 oder 2048 Kanälen gespeichert werden. Hat der MCA die vorgewählte Kanalzahl erreicht, so springt er zum ersten Kanal zurück und erzeugt einen Reset Puls, der die EA-Rampe auf die Ausgangsspannung zurückstellt. Ein neues Spektrum wird dann durchlaufen und in den Speicher des MCA addiert, bis eine vorgewählte Anzahl von solchen "Sweeps" erreicht ist.

b) K-Spektren

Die Kanalfortschaltimpulse des MCA werden bei vorgewählter Energie $\hbar\omega$ im Zähler des OPS-Kopplers (OK) gezählt (siehe Abb. 3.3) Wie bei der Betriebsart Energiespektrum ist eine Pulsverbreiterung (T) notwendig. Da der OPS-Koppler auf dem Potential der Winkelablenkung liegt (bis zu 3 KV), ist eine galvanische Trennung mittels Optokopplern (O) erforderlich. Die gezählten Pulse werden in einem Digital-Analog-Wandler (DAU) in eine der Kanalzahl N proportionale Spannung u_k umgesetzt. Diese Spannung steuert ein programmierbares Hochspannungsnetzgerät OPS 3500 der Fa. Kepco.
Mit Hilfe eines zweiten Hochspannungsnetzgerätes OPS 2000 (Fa. Kepco), ist es möglich, eine variable Zusatzspannung einzustellen. Die resultierende Hochspannung U_k steuert die Winkelablenkung (vergl. 3.1.1.). Es können damit K-Spektren bis 5 $\mathring{A}^{-1}$ aufgenommen werden. Bei entgegengesetzter Polung der beiden Netzgeräte werden zu K = O symmetrische Spektren von - K bis + K registriert.

Der Zähler im OK ist als Vorwahlzähler ausgebildet. Er sprint nach der vorgewählten Kanalzahl N = 512, 1024 oder 2048 auf Null zurück und die Ablenkspannung U_k erhält den Ausgangswert. Der Vielkanalanalysator startet erneut, bis eine vorgewählte Anzahl von Einzelspektren im Speicher des MCA addiert ist.

c) Vier-Winkel-Betrieb

Um zeitlich veränderliche Proben zuverlässiger untersuchen zu können, wurde die Möglichkeit vorgesehen, bei verschiedenen K-Werten gleichzeitig Energiespektren aufnehmen zu können. Dazu steuert der Zähler im OK einen 2:4 Decoder, der vier elektronische Schalter betätigt. Für jeweils 512 Kanäle wird eine vorher eingestellte Spannung u_k an den Eingang des OPS 3500 gelegt. Sind 2048 Kanäle durchlaufen, dann wurden nacheinander alle vier voreingestellten Spannungen und entsprechend 4 Wellenvektoren K_1, K_2, K_3, K_4 eingeschaltet. Im Speicher des MCA befindet sich von

$$\text{Kanal}\begin{bmatrix}0\\513\\1025\\1537\end{bmatrix}\text{ bis Kanal}\begin{bmatrix}512\\1024\\1536\\2048\end{bmatrix}\text{ ein Energiespektrum bei } K = \begin{bmatrix}K_1\\K_2\\K_3\\K_4\end{bmatrix}$$

Nach 2048 springt der Zähler im OK auf Null, der 2:4 Dekoder betätigt den Schalter 1 (entsprechend K_1) und der MCA startet erneut.

d) Kanaleichung

Zur Eichung der Kanäle des MCA bei Energie- oder K-Spektren läßt sich mit Hilfe des Vorwahlzählers im OK der Vielkanalanalysator bei einer beliebigen am Zähler eingestellten Kanalzahl N stoppen. Mit einem 5 1/2 stelligen Digitalvoltmeter (DVM) kann dann die dem Kanal zugehörige Spannung U_R bzw. U_k am Energieanalysator bzw. an der Winkelablenkung abgelesen werden. Nach Gleichung (3.3) erhält man so direkt die Verlustenergie $\hbar\omega$, die dem Kanal N entspricht.

Um aus der am DVM abgelesenen Spannung U_k den Wellenvektor K zu erhalten, ist vorher die Konstante aus Gleichung (3.2) zu bestimmen. Dies geschieht indem bei bekanntem K von Debye-Scherrer-Ringen der Probe die zugehörige Ablenkspannung U_k gemessen wird. Das Verfahren ist ausführlich von Eickmanns beschrieben (E 80).

Insgesamt ergibt sich eine eindeutige lineare Beziehung zwischen dem Wellenvektor K und der zugehörigen Kanalnummer.

Die Eichung der MCA-Kanäle bleibt über Monate auf einige 10^{-4} unverändert.

3.1.2.2 Registrierelektronik

EEV-Spektren bei verschiedenem Wellenvektor K zeichnen sich wegen der $1/K^2$-Abhängigkeit der Zählraten (siehe Abschnitt 2.1)

durch große Intensitätsunterschiede aus. Es wurde deswegen analoge Signalverarbeitung (Signal Average, (SA)) für hohe Intensitäten und digitale Signalverarbeitung (Pulszählen) für geringe Intensitäten vorgesehen.

a) Analog-Messung

Der Photomultiplierstrom wird direkt am Detektor (PM) durch einen Impedanzwandler in eine niederohmige Spannung verwandelt. Mit einem stufenlos einstellbaren Operationsverstärker wird diese Spannung an den SA-Eingang des Vielkanalanalysators angepaßt. Dort wird die Spannung wahlweise von einem 9 oder 12 bit Analog-Digital-Wandler (DAU) in eine Binärzahl umgesetzt und abgespeichert. Durch erhöhen der Zahl der Durchläufe pro Spektrum läßt sich auch bei ungünstigem Signal-Rausch-Verhältnis eine gute Statistik erhalten.

Eine Begrenzung bei großen Zählratenunterschieden in einem Spektrum stellt der relativ kleine Speicherbereich von maximal 2^{18} = 262 144 Pulsen pro Kanal dar.

b) Pulszählen (PC)

Die aus dem Energieanalysator (EA) austretenden Elektronen erzeugen im Szintillator Lichtblitze, die vom Photomultiplier PM einzeln verstärkt werden (Minimale Pulsbreite des PM : $t \simeq 10$ ns). Mit Hilfe einer Vorverstärker-, Verstärker-,

Diskriminator-Anordnung (Fa. Ortec) lassen sich Zählraten bis 100 MHz im Vielkanalanalysator zählen und abspeichern. Der besondere Vorteil eines besseren Signal-Rausch-Verhältnisses gerade bei geringen Zählraten gegenüber einer Analog-Messung (I O P 71) ließ sich jedoch nicht ausnutzen. Ursache dafür war die mangelhafte Abtrennung von Dunkelpulsen aufgrund der Szintillatoranordnung.

3.2. Probenpräparation

3.2.1 Phasendiagramm

In Abbildung 3.4 ist das Phasendiagramm für Aluminium-Magnesium dargestellt (H 58). Im wesentlichen treten vier verschiedene Phasen auf.

Die α-Phase ist die Aluminium reichste Phase. Es ist eine feste Lösung von Mg im Al-Gitter und besitzt kubisch-flächenzentrierte (fcc) Struktur.

Die β-Phase besitzt einen Mg-Anteil von 37,5 bis 40 at%. Es ist eine intermetallische Verbindung, deren Struktur nicht vollständig geklärt ist.

Die γ-Phase ist ebenfalls eine intermetallische Verbindung. Sie hat die ideale Zusammensetzung $Mg_{17}Al_{12}$ (58,6 at% Mg). Die Struktur ist vom Typ α-Mn. Die Gitterkonstante wird mit 10,469 bis 10,591 Å je nach Mg-Konzentration angegeben (H 58).

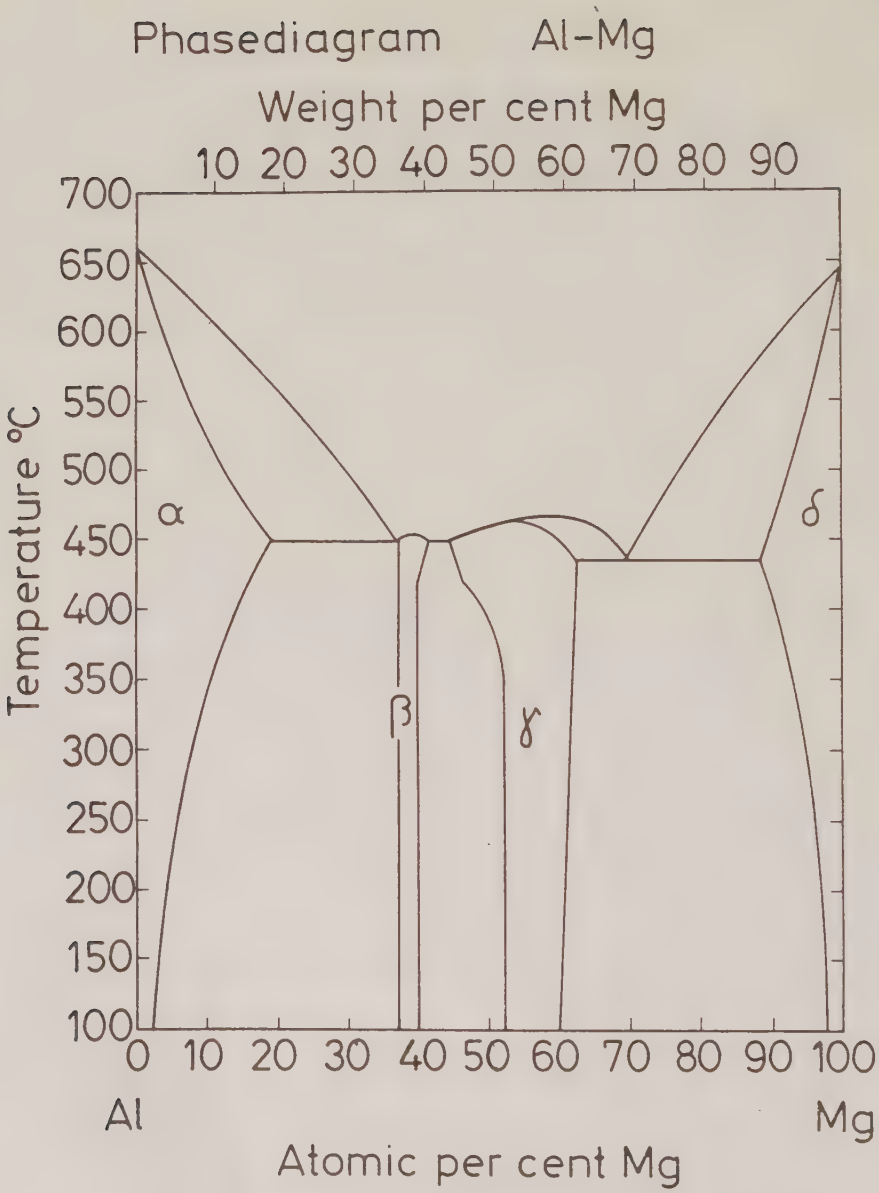


Abb. 3.4: Vereinfachtes Phasendiagramm für die Al-Mg-Legierugen nach Hansen (H58).

Die δ-Phase ist die Al ärmste Phase. Das Aluminium ist in fester Lösung im hexagonalen Mg-Gitter eingebaut.

Zwischen den einzelnen Phasen gibt es jeweils große Konzentrationsbereiche, in denen zwei Phasen nebeneinander vorliegen, die sogenannten Entmischungsbereiche.

3.2.2 Flashverdampfen

Die Proben werden auf einer Elektronenmikroskop-Lochblende freitragend aufgebracht. Der Lochdurchmesser betrug 200 µm . Dies entspricht etwa dem Strahldurchmesser.

Um die Mehrfachstreuung gering zu halten, sollte die Dicke der Schichten die mittlere freie Weglänge λ für die Elektronenstreuung unter Bildung eines Plasmons nicht deutlich überschreiten. Für Al ergibt sich $\lambda \simeq 500$ Å (S 79). Die Herstellung solch dünner Schichten ist durch Aufdampfen möglich. Die Anwendung des üblichen Verfahrens führt jedoch nicht zu kontrollierbaren Konzentrationsverhältnisse (P 60). Die Ursache dafür liegt in den stark unterschiedlichen Dampfdrücken der beiden Substanzen: Al erreicht einen Dampfdruck $p = 10^{-3}$ mbar bei 1546°C, Mg erreicht diesen Richtwert für das Aufdampfen bereits bei 584°C (G 72). Um eine kontrollierbare Zusammensetzung der Legierung zu erhalten, wurde deshalb das Flash-Verdampfer-Verfahren angewandt (HS 48, Ho 58). Dabei

werden feine Körner der Legierung oder Legierungsbestandteile in geringen Mengen in ein überhitztes Verdampferschiffchen befördert, so daß sie schlagartig verdampfen. Die Korngrößen waren kleiner 45 µm für Al und kleiner 300 µm für Mg. Es wurde ein hochbordiges kastenförmiges Tantalschiffchen benutzt. Als besonders kritisch für das Einhalten der Ausgangskonzentration erwies sich die Temperatur des Schiffchens. Sie wurde niedriger als sonst üblich gewählt (MG 65). Bei Aufdampfraten von 10 Å/s ließ sich die Schichtkonzentration von Mg auf ± 10 at % zur Ausgangskonzentration einhalten. Aus dem Phasendiagramm (Abb. 3.4) ist jedoch zu entnehmen, daß diese Genauigkeit nicht ausreicht, um gezielt bestimmte Phasen zu präparieren.

Alle Schichten, mit Ausnahme von reinem Mg, wurden auf frisch gespaltene NaCl-Kristalle bei Zimmertemperatur aufgedampft. Die Schichtdicke betrug 400-600 Å. Sie konnte mit einem Schwingquarz-Schichtdickenmesser (Fa. Balzers) gemessen werden. Die dünnen Proben sind dann mit destilliertem Wasser vom Substrat abgelöst und auf Kupfer-Objektblenden aufgefangen worden.

Wegen der leichten Oxidierbarkeit des Mg haben wir hier ein anderes Verfahren angewandt. Als Substrat wurde Zapon auf Glas verwendet. Die Schicht ließ sich dann mit einem Gemisch aus Aethanol und Aceton ablösen. Die Schichtdicke betrug 1300 Å.

3.2.3 Konzentrationsbestimmung

Die Konzentrationsbestimmung an den Proben geschah durch Vergleich der Plasmonenenergie $\hbar\omega$ mit bekannten Werten aus der Literatur (SM 68, HEWD 72). Andere Versuche die Mg-Konzentration zu bestimmen schlugen fehl. Die Röntgenbeugung, durchgeführt in der Zentralabteilung für chemische Analysen KFA Jülich an einer Schicht der γ-Phase, ergab keine Beugungsreflexe, die der γ-Phase zugeordnet werden konnten. Röntgenfluoreszenzmessungen mit einem Rasterelektronenmikroskop erfordern eine auf die Schichtdicke abstimmbare Primärenergie und eine Eichsubstanz; beides stand nicht zur Verfügung.

In den Entmischungsbereichen, in denen zwei Phasen nebeneinander vorliegen, versagt die Methode der Konzentrationsbestimmung aus der Plasmonenenergie. Es treten zwei zu den beiden Phasen gehörige Maxima im EEV-Spektrum auf, deren Intensitätsverhältnis K-abhängig ist (M 80).

4. Meßergebnisse

4.1 Auswertung der Dispersionsmessungen

In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der Volumen-Plasmon-Dispersion für Al, Mg und die Al-Mg-Legierungen der α-, γ- und δ-Phase vorgestellt. Die Meßwerte $\hbar\omega_p(k)$ wurden wie folgt ausgewertet: Ausgehend von den Resultaten früherer Messungen, die bei Al und Mg in erster Näherung eine quadratische Abhängigkeit der Plasmonenergie vom Wellenvektor beobachtet haben (R 80), wurde $\hbar\omega_p$ über einer quadratischen k-Skala aufgetragen. Neuere Ergebnisse an Al (K 73, PO 75, K 78) zeigen jedoch, daß die Dispersionkurve $\hbar\omega_p(k^2)$ für $k < 1\text{Å}^{-1}$ nicht durch eine Gerade approximiert werden kann. Die Meßpunkte lassen sich jedoch sehr gut durch zwei Geraden beschreiben. Dies wurde mit einem Rechenverfahren nach der Gaussschen Fehlerquadrat-Minimierung durchgeführt (S 80). Dabei konnten die beiden Steigungen der Geraden, der Schnittpunkt mit der Energieachse $\hbar\omega_p(0)$ und der Schnittpunkt der beiden Geraden bei $k = \tilde{k}$ als Parameter frei variiert werden.

Auf diese Art wurde aus der Steigung $\frac{\partial \hbar\omega_p}{\partial k^2} = \frac{\hbar^2}{m}\alpha$ für $k < \tilde{k}$ der Dispersionskoeffizient α_L gewonnen, für $k > \tilde{k}$ konnte ein Dispersionskoeffizient α_H bestimmt werden. Die Werte für α_L und α_H sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

In Abbildung (4. 1) sind die gemessenen Plasmondispersionen gezeigt. Die Energie des Plasmon-Maximums $\hbar\omega_p$ in eV ist

über quadratischer Wellenvektorskala in $\mathring{A}^{-2}$ aufgetragen. Entsprechend der abnehmenden Elektronendichte n erhält man nach

$$\omega_p^2 = 4 \pi n e^2 / m \qquad (4.1)$$

(Elementarladung e, Elektronenmasse m)
mit zunehmender Mg-Konzentration eine kleiner werdende Plasmonenergie.

Ein Maß für die Abweichung von der quadratischen Dispersion ist die Differenz Δ der Schnittpunkte der zwei Dispersionsgeraden mit der Energieachse (siehe Abb. 4.1). Eine Zusammenstellung der Werte von $\hbar\omega_p(0)$ und Δ ist in Tabelle 2 gegeben.

4.1.1 Aluminium (Abb. 4.2)

Aluminium ist eine der mit EEV-Spektroskopie gut untersuchten Substanzen (R 80). Der in der vorliegenden Arbeit bestimmte Dispersionskoeffizient $\alpha_H = 0{,}40$ stimmt gut mit einer früheren Messung (PO 75) überein, die ebenfalls nur $\hbar\omega_p(k)$ für $k > \bar{k} = 0.5 \mathring{A}^{-1}$ berücksichtigt. Zwei weitere Autoren, die Werte für α_H angeben, liegen jedoch mit $\alpha_H = 0{,}45$ (K 73) und $\alpha_H = 0{,}46$ (K 78) darüber.

Die Abweichung von der quadratischen Dispersion, mit Δ als Maß dafür, ist im Aluminium (vergleiche Tabelle 2) am größten von allen Substanzen: $\Delta = 0{,}38$ eV.

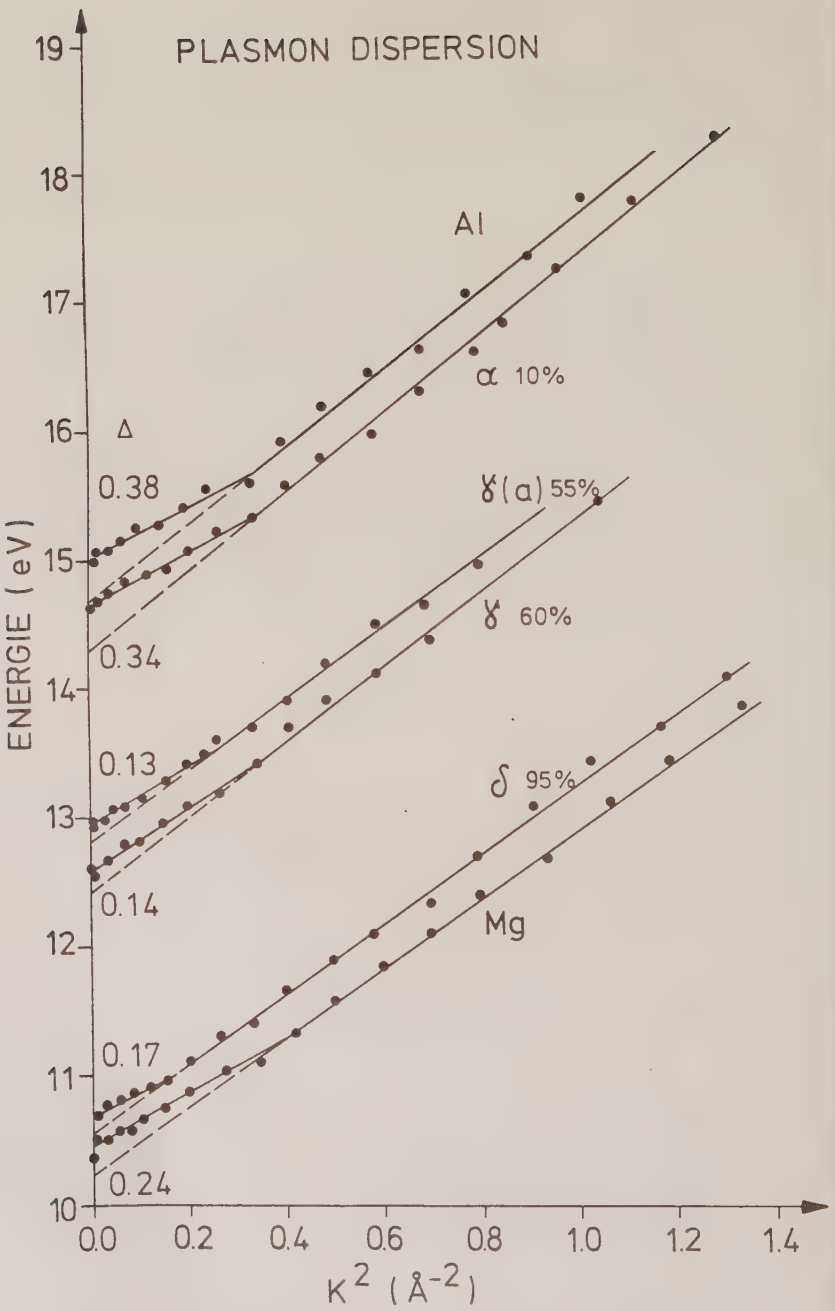


Abb. 4.1: Die Plasmondispersion von Al, Mg, und Al-Mg-Legierungen der α-, γ- und δ-Phase

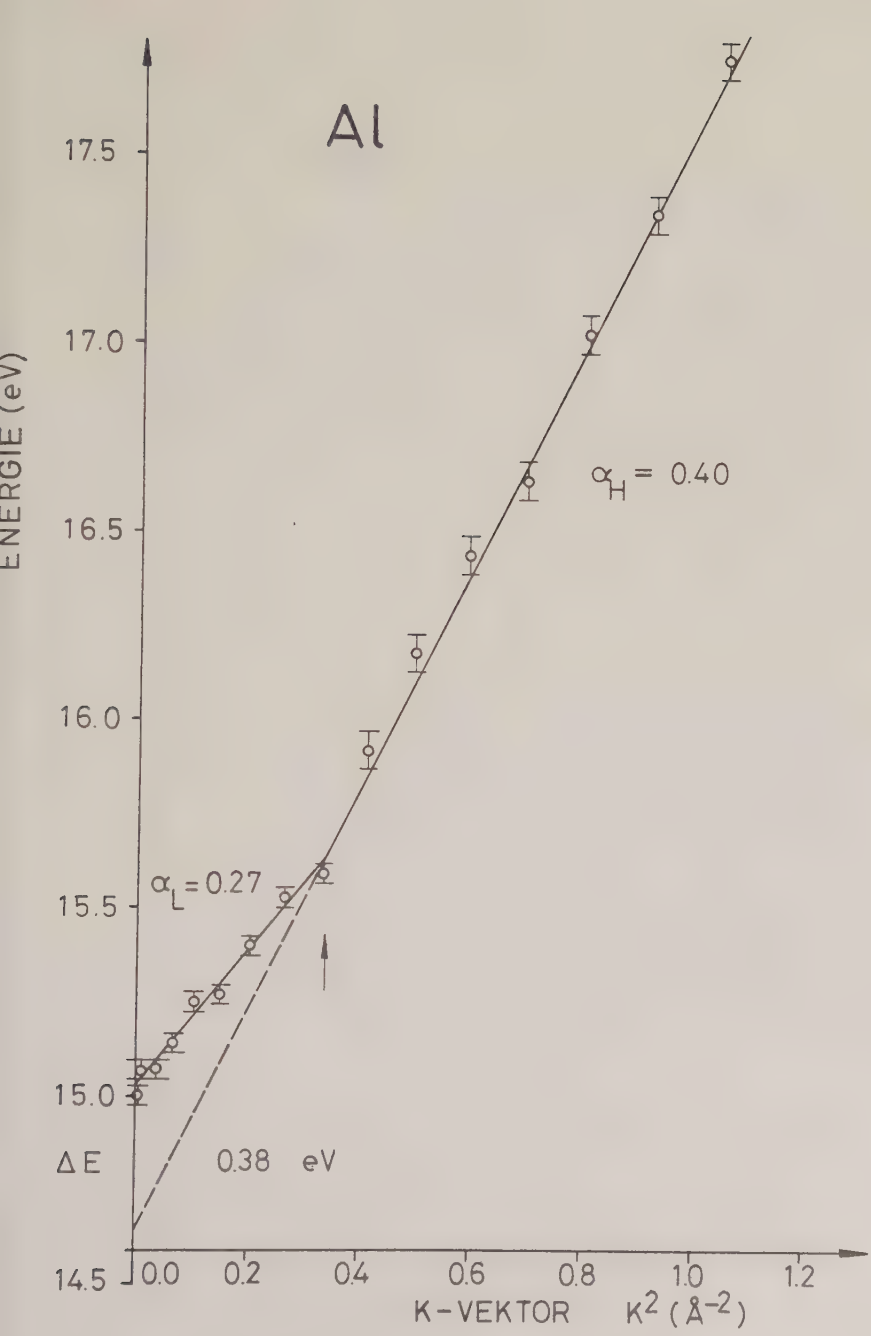


Abb. 4.2: Plasmondispersion $\hbar\omega_p(k)$ von Aluminium über quadratischer Wellenvektorskala angetragen.

4.1.2 Magnesium (Abb. 4.3)

Magnesium ist weniger häufig untersucht worden als Al (R 80). Ein Grund dafür mag die schwierigere Präparation sein (siehe 3.2). Die Abweichungen von der quadratischen Dispersion Δ = 0,24 eV ist geringer als im Al und noch nicht berichtet worden. Die Messungen von Kloos (K 73) deuten jedoch bereits auf einen solchen Effekt hin.

4.1.3 Al-Mg α -Phase (Abb. 4.4)

Die α -Phase ist nach Hansen (H 58) eine feste Lösung von Mg in Al mit fcc-Struktur. Aus der energetischen Lage des Plasmon Maximums erhält man nach Hibbert et.al. (HEWD 72) eine Mg-Konzentration von 9,1 %. Mit zunehmendem Mg-Gehalt nimmt die Zahl der Fehl- und Leerstellen zu (E 52). Dies äußert sich in einer gegenüber dem reinen Al größeren Halbwertsbreite (HWB) des Plasmons von 1,34 eV (Al = 0,8 eV). Die Halbwertsbreiten sind um die apparative Auflösung ΔE korrigiert nach der Näherungsformel (K 73):

$$HWB = (HWB_{Exp}^2 - \Delta E^2)^{1/2} \qquad (4.2)$$

HWB_{Exp} bedeutet die unkorrigierte Halbwertsbreite. Die Plasmonenergie ist entsprechend einer geringeren Elektronenkonzentration nach Gl. 4.1 verringert. Wie beim reinen Al ist eine Approximation der Meßpunkte durch zwei Geraden mit

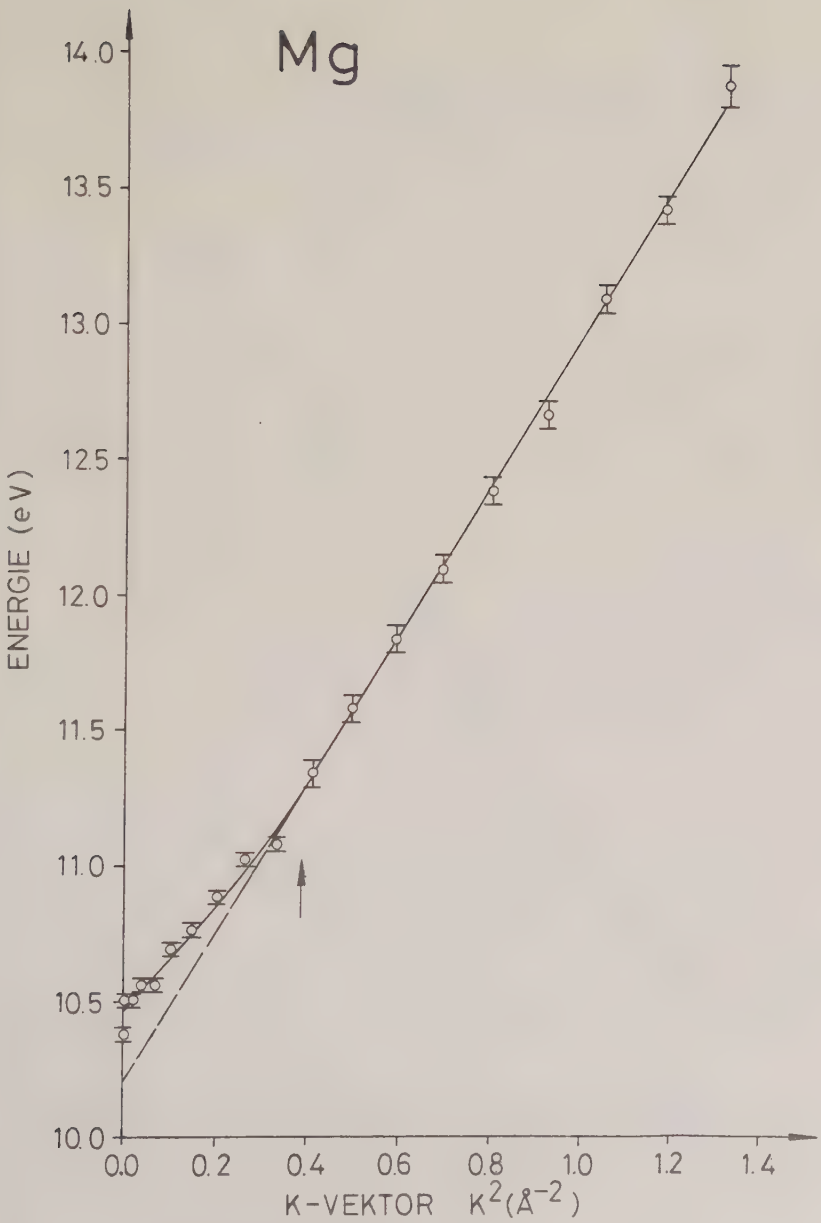


Abb. 4.3: Plasmondispersion $\hbar\omega_p(k)$ von Magnesium über quadratischer Wellenvektorskala angetragen.

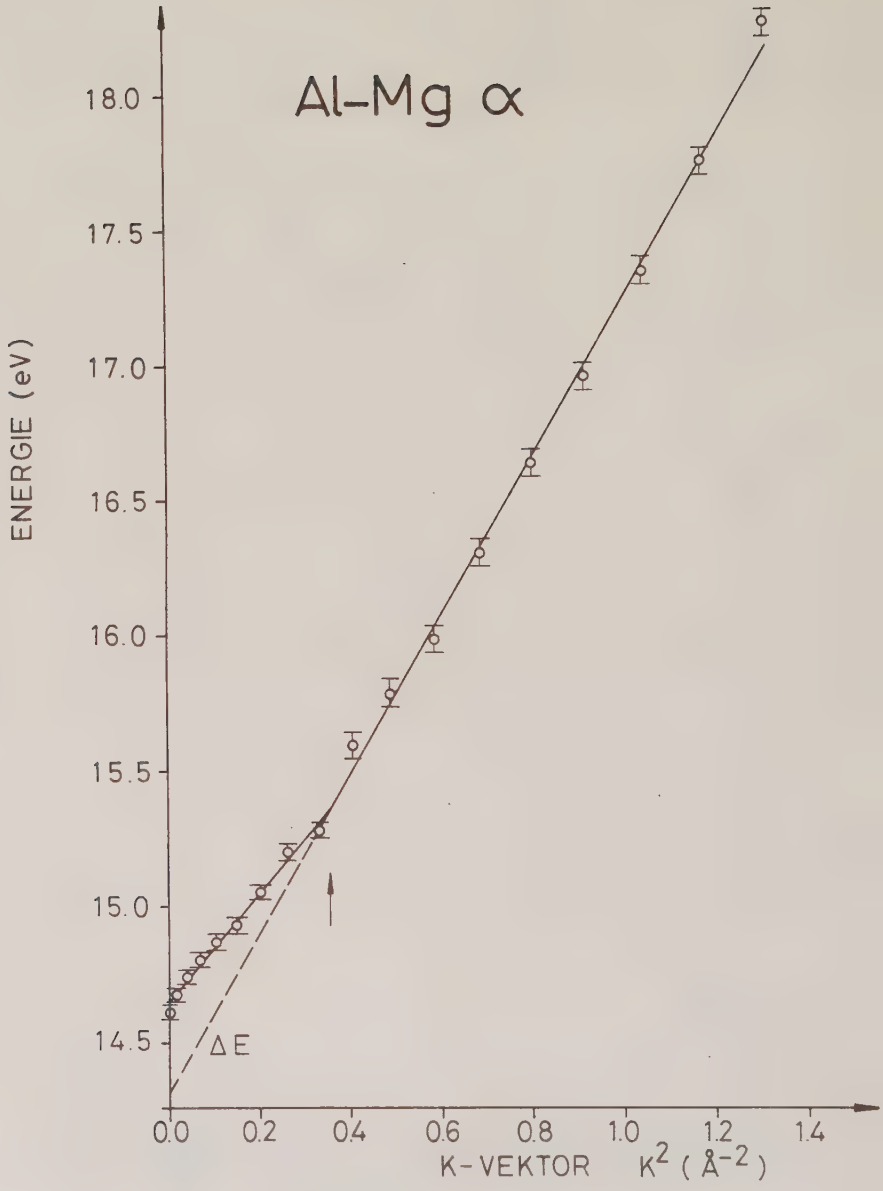


Abb. 4.4: Plasmondispersion $\hbar\omega_p(k)$ von Al-Mg der α-Phase

den Dispersionskoeffizienten α_L und α_H gemacht worden (Tabelle 1). Die Differenz der Achsenabschnitte Δ = 0,34 eV ist geringer als bei Al (Tabelle 2).

4.1.4 Al-Mg γ-Phase (Abb. 4.5 u. 4.6)

Die γ-Phase stellt eine intermetallische Verbindung der idealen Zusammensetzung $Mg_{17}Al_{12}$ dar. Die Einheitszelle ist vom Typ α-Mn mit einer Gitterkonstanten von 10 Å (H 58). Die Oxidation, kenntlich an der Intensität des Plasmonmaximums von Al_2O_3 bei 22,4 eV, war stärker als in den anderen Phasen. Die große Halbwertsbreite des Plasmons von 1,57 eV deutet auch auf einen verstärkten Einbau von Restgas beim Aufdampfen hin. Die deutlich breiteren Debye-Scherrer-Ringe lassen auf kleine Kristallite schließen, so daß die Konzentrationsbestimmung mit Röntgenbeugung unmöglich wurde (siehe Abschnitt 3.2.2).

In Abb. 4.5 ist die Dispersion des Plasmons in der γ-Phase mit einer Mg-Konzentration von 55 at% gezeigt. Die Meßpunkte werden durch zwei Geraden approximiert (α_L, α_H , Tab.1). Die Abweichung von der quadratischen Dispersion nach Gl. (2.16) ist gering. Δ = 0,13 eV beträgt noch etwa 1/3 des Al-Wertes und liegt an der Grenze der Genauigkeit.

Die Kristallite der γ-Proben wurden durch Tempern vergrössert, um den Einfluß der Korngrößen auf die Dispersion abschät-

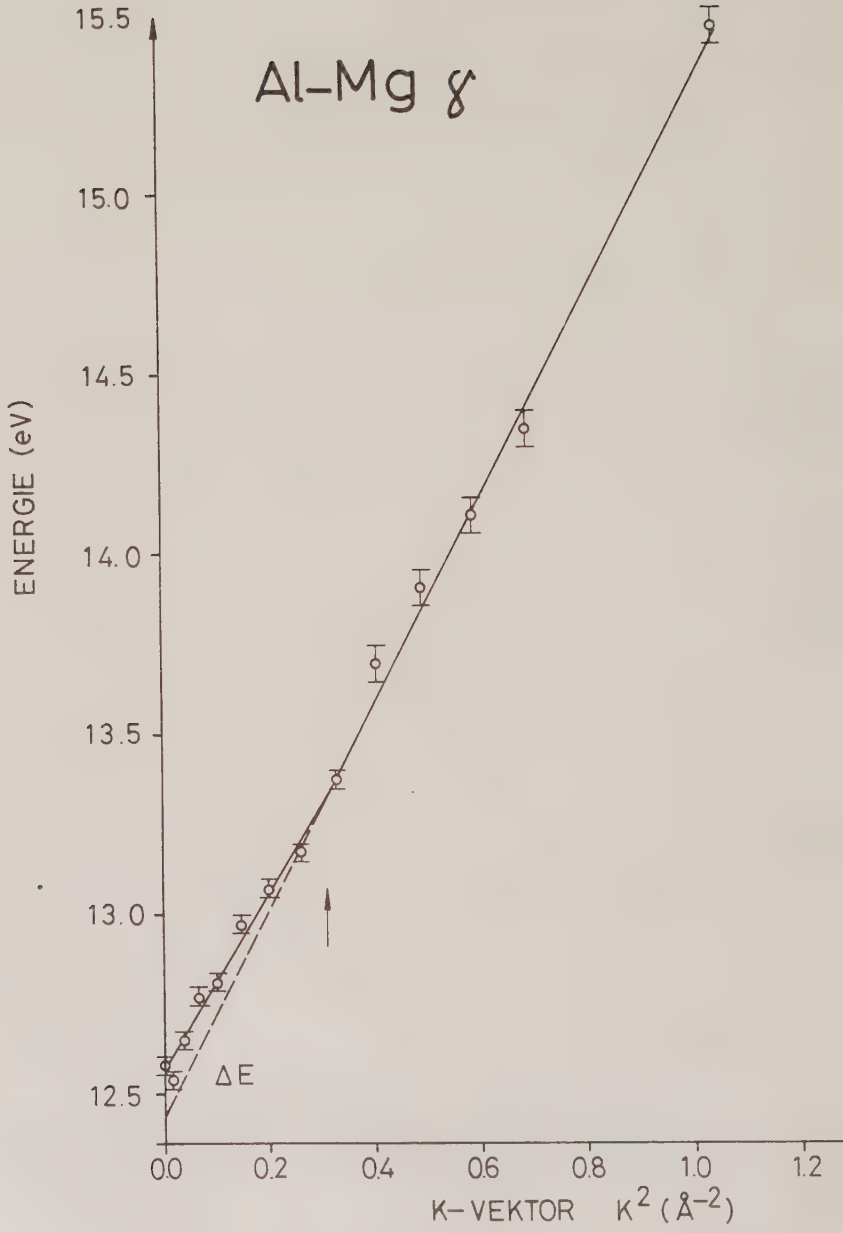


Abb. 4.5: Plasmondispersion $\hbar\omega_p(k)$ von Al-Mg der γ-Phase

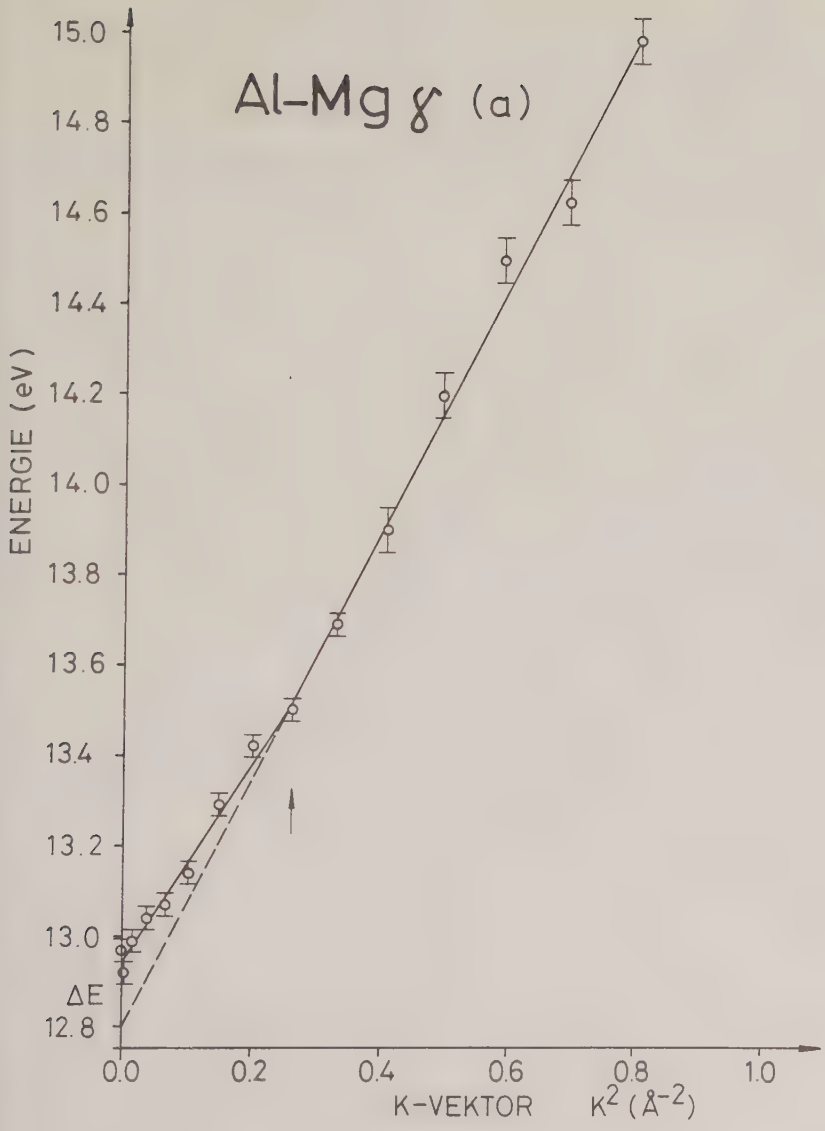


Abb. 4.6: Plasmondispersion $\hbar\omega_p(k)$ von Al-Mg der γ-Phase. Die Probe wurde getempert (a). Nähere Erklärung im Text.

zen zu können. Mehrstündiges Tempern bei 300°C in der Apparatur führte zu einer leichten Verringerung der Halbwertsbreite. (HWB_a = 1,49 eV.) Die Dispersion der getemperten Probe ist in Abb. 4.6 gezeigt. Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die Messungen an getemperter und ungetemperter Probe überein. (Tab. 1).

4.1.5 Al-Mg δ-Phase (Abb. 4.7)

Die δ-Phase stellt eine feste Lösung von Al in Mg mit hcp-Struktur dar (P 58). Der Al-Anteil wurde aus der Plasmonenergie zu 4 at% bestimmt (SM 68). Die Halbwertsbreite des Plasmonmaximums ist mit 1,05 eV nur wenig größer als in Mg (0,81 eV). Es war möglich, die Proben im üblichen Verfahren mit Wasser von NaCl abzulösen, ohne daß dies zu verstärkter Oxidation führte. Der Dispersionskoeffizient α_H = 0,36 unterscheidet sich nicht von reinem Magnesium. Die Abweichung von der quadratischen Dispersion (Gl.(2.16)) ist jedoch geringer als im Mg (Tab. 2).

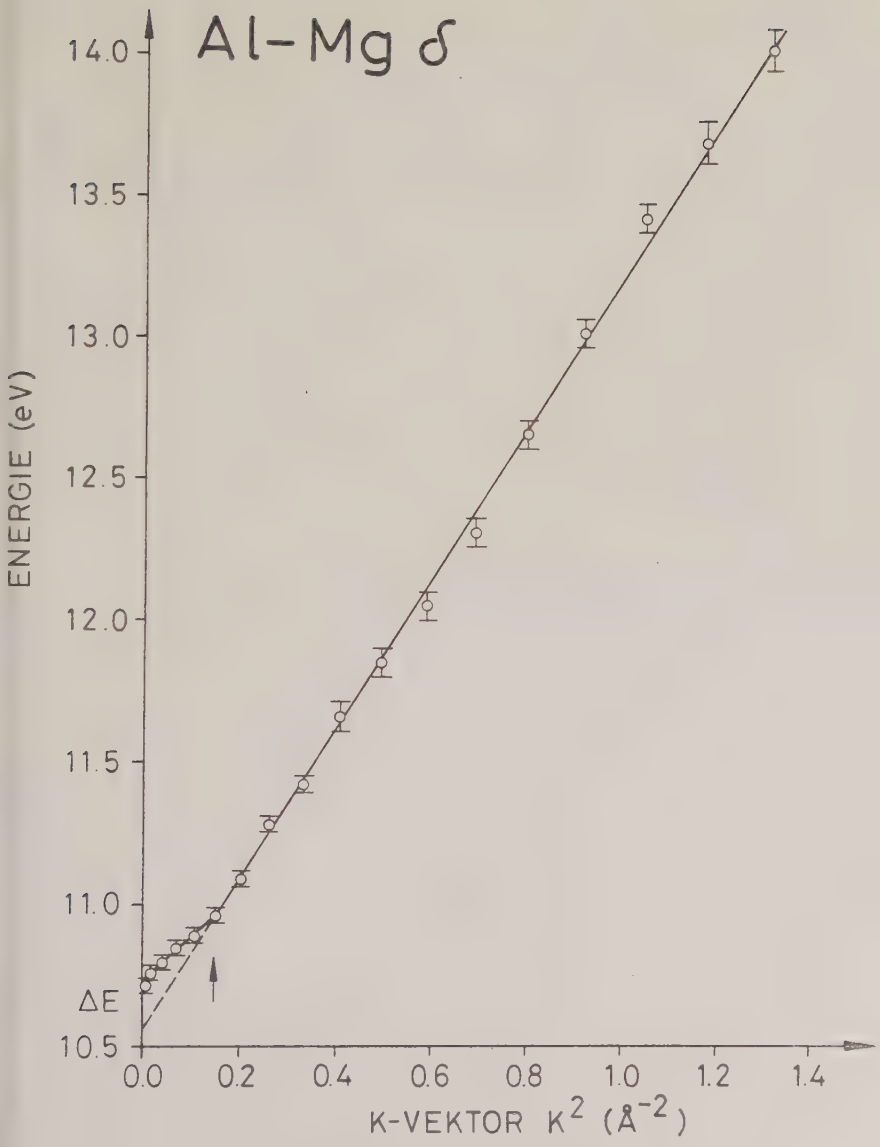


Abb. 4.7: Plasmondispersion $\hbar\omega_p(k)$ von Al-Mg der δ-Phase

Tabelle 1:

Dispersionkoeffizienten α

	diese Arbeit		andere Autoren			
	α_L	α_H		α_L	α_H	
Al	0.25	0.40	Al	0.13	0.45	(K 73)
α	0.27	0.39		0.21	0.46	(K 78)
γ	0.33	0.38		0.24	0.40	(PO 75)
γ(a)	0.30	0.37				
δ	0.22	0.36				
Mg	0.27	0.36				

Die Genauigkeit der Dispersionkoeffizienten ergibt sich aus den Least-Squares-Fits zu $\alpha_H \pm$ 5% und $\alpha_L \pm$ 7% .

Tabelle 2: Plasmonenergien $\hbar\omega_p(0)$ und Δ-Werte

	diese Arbeit		andere Autoren		
	$\hbar\omega_p(0)$	Δ	$\hbar\omega_p(0)$	Δ	
Al	15.03	0.38 ± 0.04	14.94	0.44	(K 78)
			14.97	0.47	(P075)
			14.95	0.55	(K 73)
α	14.65	0.34 ± 0.07			
γ	12.55	0.13 ± 0.09			
γ(a)	12.95	0.14 ± 0.07			
δ	10.73	0.17 ± 0.04			
Mg	10.46	0.24 ± 0.07			

Alle Zahlenangaben in eV. Der Fehler für die Plasmonenergien $\hbar\omega_p(0)$ in dieser Arbeit ist für alle Messungen kleiner 0.4%.

5. Diskussion

5.1 Dispersionskoeffizienten

Die bisherigen Messungen (R 80) und Rechnungen (B 78, S 78) zur Plasmondispersion in Al, wobei Theorie und Experiment allerdings von quantitativer Übereinstimmung weit entfernt sind, ergeben übereinstimmend, daß eine Beschreibung der Dispersion durch einen quadratischen Verlauf für $k < 1 Å^{-1}$ nicht möglich ist. Die Ergebnisse unserer Dispersionsmessungen zeigen jedoch (siehe Kapitel 4), daß bei den reinen Substanzen Al und Mg und den Legierungen der α- , γ- und δ-Phase die Meßpunkte $\hbar\omega_p(k)$ durch zwei Geraden bei quadratischer K-Skala approximiert werden können (vergl. Abb.4.1). Es stellt sich die Frage (Abschnitt 2.4) welcher Dispersionskoeffizient α beim Vergleich mit der Theorie herangezogen werden muß.

Für ein Freies Elektronengas gilt die Beziehung

$$\alpha \sim (\hbar\omega_p(0))^{1/3} \qquad (5.1)$$

wobei gilt

$$\alpha = \frac{m}{\hbar^2} \frac{\partial \hbar\omega}{\partial k^2 p} \Big|_{k \to o} \qquad \text{(siehe 2.16)}$$

Gl.(5.1) läßt sich leicht auf endliche k erweitern. Durch einfaches Ausrechnen von $\alpha \Big|_{k_c}$ ergibt sich aus der Dispersionskurve gemäß der Lindhard DK eine sehr gute Übereinstimmung mit Gl. (5.1). (Vergl. Abb. 5.2). In Anlehnung an die experimentellen Verhältnisse wurde $\tilde{k}_c$ zu 0.8 k_c gewählt, wobei k_c der Cutoff-Wellenvektor (P 64) ist.

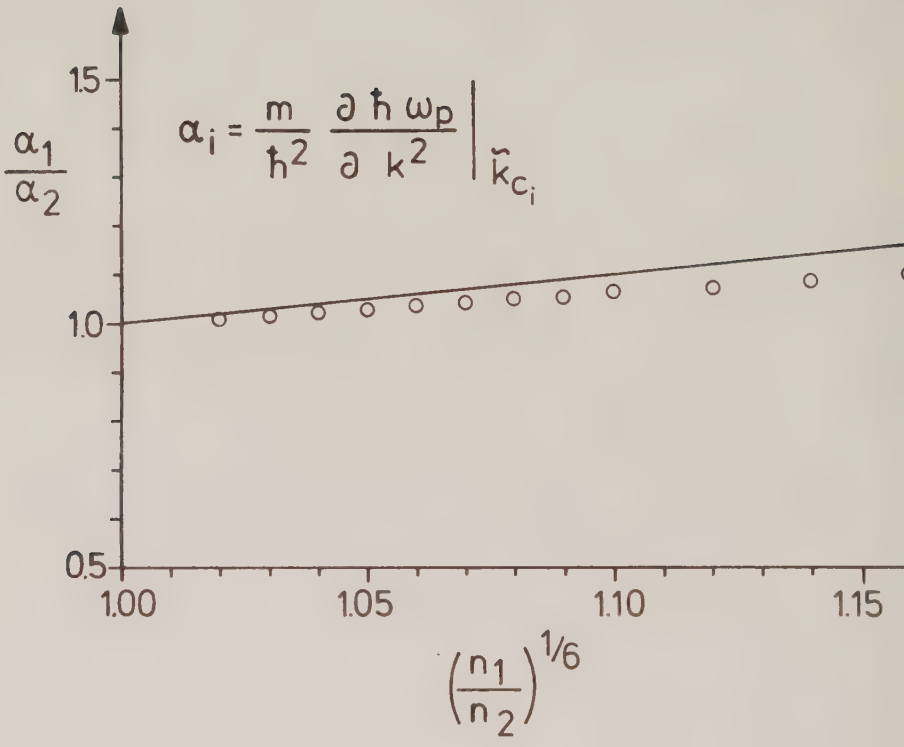


Abb. 5.2: Für jeweils zwei Elektronendichten n_1, n_2 wurden nach der Lindhard DK die Quotienten α_1/α_2 aus den Dispersionskoeffizienten

$$\alpha_i = \frac{m}{\hbar^2} \frac{\partial(\hbar\omega)_i}{\partial k^2 p}\Big|_{\tilde{k}_{c_i}} \quad \text{berechnet, } (i=1,2).$$

Wobei $\tilde{k}_{c_i} = 0.8\, k_{c_i}$, mit dem zur Elektronendichte n_i gehörenden Cutoff-Wellenvektor k_{c_i}.
Als Gerade wurde $\alpha \sim n^{1/6}$ eingezeichnet.

5.2 Interbandübergänge

Die Dispersionsmessungen der reinen Substanzen und Legierungen zeigen ein unterschiedlich starkes Abweichen von der quadratischen Dispersion (Gl. (2.16)), ausgedrückt in verschieden großem Δ (Tabelle 2).

Wenn niederenergetische Interbandübergänge die Ursache für dies Verhalten sind, dann könnten optische Reflexionsmessungen Aufschluß über einen Zusammenhang geben.

Ich habe deswegen Reflexionsmessungen an Proben von reinem Al und Mg der γ-Phase durchgeführt. Dazu konnte ich ein CARY Photospektrometer (Varian) am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart benutzen. Der Meßbereich erstreckte sich von 0,5 - 6 eV Photonenenergie. Die Proben waren auf ein Glassubstrat aufgedampft und hatten eine Dicke von 1000 Å . Ein Teil der Proben wurde für das Elektronenspektrometer präpariert und untersucht.

In Abbildung 5.3 sind die Ergebnisse der Reflexionsmessungen für Al, Mg und Al-Mg der γ-Phase gezeigt. Die Reflektivität in % ist über der Photonenenergie in eV aufgetragen. Der Abfall der Reflektivität bei höheren Energien ist charakteristisch für im Hochvakuum aufgedampfte und am Luft gemessene Schichten (PDR 67, HH 73). Bei Mg rührt der Abfall zum Teil von einem Minimum der Reflektivität bei 7 eV her (GAWH 73), das von Oberflächenrauhigkeiten stark beeinflußt wird.

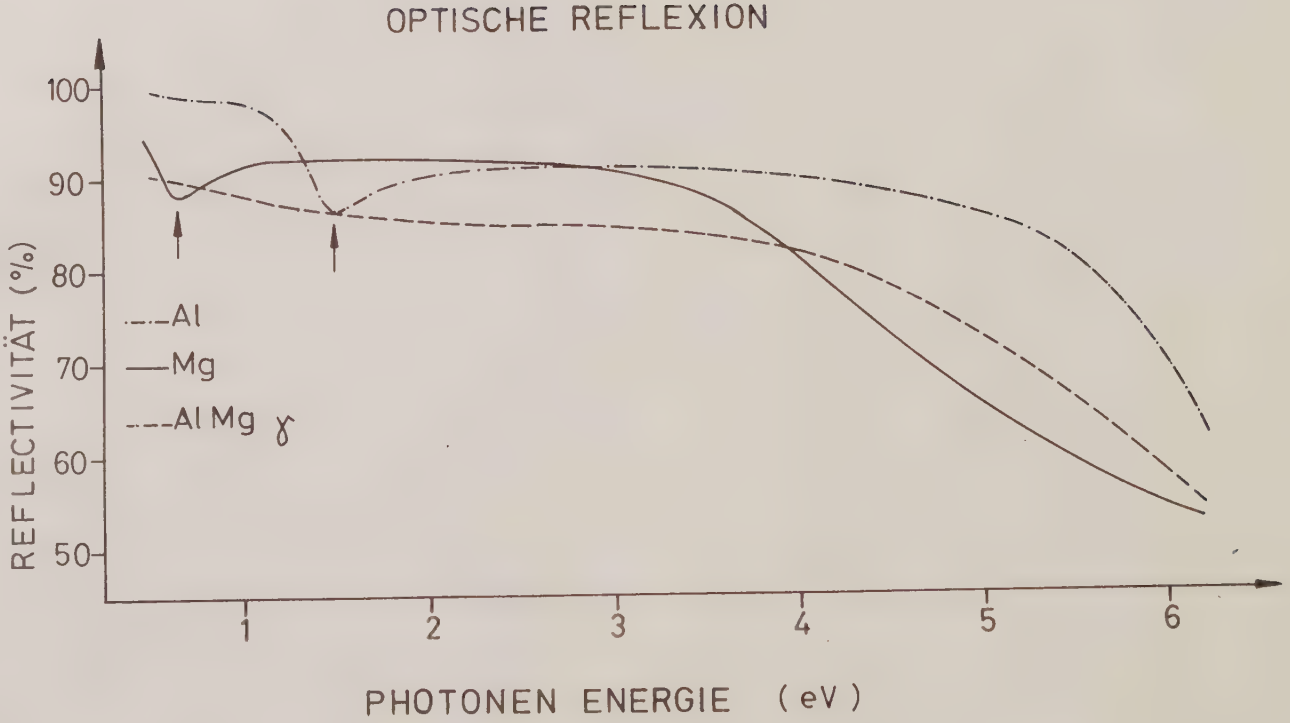


Abb. 5.4: Reflexion von polykristallinen Aufdampfschichten, aufgenommen mit einen CARY Photospektrometer

Von besonderer Bedeutung für unsere Interpretation der Plasmondispersion ist der niederenergetische Teil der Reflexionsspektren. Bei Al finden wir das bekannte 1.5 eV Minimum (P 69). Es rührt von Interbandübergängen am Rand der Brilloninzone her. Diese sogenannten Parallel-Band-Übergänge (AS 71) treten auch in anderen Metallen auf (H 66). Magnetoakustische Messungen der Fermifläche von Mg zeigen eine Bandaufspaltung von 0,46 eV (KS 66). Wir finden in Mg ein Minimum der Reflektivität bei 0,67 eV in Übereinstimmung mit Absorptionsmessungen von Graves und Lenham (GL 67). Die Diskrepanz zwischen optischen und Magnetoakustischen Messungen kann auf die unterschiedliche Meßmethode bei nicht exakt parallelen Bändern zurückgeführt werden (SA 74). Die Struktur bei 0,67 eV im Mg kann demnach ebenfalls auf Parallel-Band-Übergänge zurückgeführt werden (vergl. Abschnitt 2.3).

Das Reflexionsspektrum von Al-Mg der γ-Phase zeigt im gesamten gemessenen Bereich von 0,5 eV bis 6 eV keine Struktur, die auf Interbandübergänge hindeuten würde.

Als Schlußfolgerung aus Dispersions- und Reflexionsmessungen ergibt sich, daß dort, wo Parallel-Band-Übergänge auftreten (Al, Mg), die Abweichung Δ von der quadratischen Dispersion am stärksten ist (Tab.2). In Al-Mg der γ-Phase ist Δ an der Grenze der Meßgenauigkeit. Hier ist auch kein Interband-übergang mit optischer Reflexion nachzuweisen. Bos und Lynch (BL 70) finden an Al-Mg der α-Phase, daß bei 5,5 at% Mg der 1,5 eV-Übergang mit leicht reduzierter Oszillatorstärke erhalten bleibt. Dies entspricht einem gegenüber reinem Al verringerten Wert für Δ, wie wir ihn bestimmt haben (Tab. 2) in α-Al-Mg.

5.3 Vergleich mit Rechnungen

Die Dispersion für ein Freies Elektronengas nach der Lindhard DK ist in einer Arbeit von Sturm (S 78) für Al gezeigt. Er weist dort auf den Gültigkeitsbereich der Näherung nach Gl. (8) hin. Bross (B 78) berechnet die DK mit Hilfe der Pseudopotentialtheorie in der RPA mit Hubbard Korrektur (Hu 57). In Abb. 5.3 sind beide Dispersionskurven über einer K^2-Abszisse aufgetragen. Zum leichteren Vergleich wurde die Bross-Kurve um 1 eV "angehoben".

Um den Einfluß eines niederenergetischen Interbandüberganges auf die Plasmondispersion zu demonstrieren, haben wir $\hbar\omega_p(k)$ berechnet, das sich ergibt, wenn zur Lindhard DK die Polarisierbarkeit gebundener Elektronen hinzugefügt wird.

Die Bedingung für das Auftreten der Plasmaschwingungen ist

$$\varepsilon(k,\omega) = 0 \qquad (5.2)$$

Durch bestimmen der Nullstellen dieser Funktion für diskrete K_i erhält man $\hbar\omega_p(k_i)$.

Da die Plasmonen nach der Lindhard DK nicht gedämpft sind (L 54) muß lediglich

$$\text{Re}\ \ \varepsilon_L(k_i,\omega_i) = 0 \qquad (5.3)$$

bestimmt werden. Wir haben dies für Al mit drei freien Valenzelektronen (n_f=3) durchgeführt. Das Ergebnis stimmt mit Sturm (S 78) überein (Abb. 5.4).

Um den Einfluß eines niederenergetischen Interbandüberganges auf die Dispersion zu untersuchen, wurde die Polarisierbarkeit $\alpha_{geb}(\bar{k},\omega)$ von gebundenen Elektronen mit

folgendem Ansatz hinzugefügt:

$$\alpha_{geb}(\bar{k},\omega) = \frac{4\pi n_b e^2/m}{(\omega_0^2(\bar{k}) - \omega^2) - i\Gamma\omega} \quad (5.4)$$

Hierin ist $\omega_{geb}^2 = 4\pi n_b e^2/m$ ein Maß für die Oszillatorstärke des Obergangs, $\hbar\omega_0(\bar{k})$ den Bandabstand der parallelen Bänder (siehe Abschnitt 2.3) und Γ beschreibt die Dämpfung des Oszillators.

Betrachtet man in erster Näherung nur Obergänge in <100>-Richtung, so ergibt sich für $\omega_0(\bar{k})$ nach Abb. 2.3

$$\omega_0(k) = 2\,U_{200}/h \pm \frac{\hbar}{2m}\,(2(k_F^2 - (2\pi/a)^2)^{1/2}k + k^2) \quad (5.5)$$

Die Dispersion $\omega_0(\bar{k})$ der Interbandübergänge ist in einkristallinem Aluminium von Petri und Otto gemessen worden (PO 75). In der Rechnung haben wir nur den positiven Zweig (+ Zeichen in Gl. (5.5)) in Obereinstimmung mit dem Experiment berücksichtigt.

Um die Summenregel (siehe Anhang) zu erfüllen, wurde der Lindhardteil der Gesamt-DK wie folgt abgeändert:

$$\varepsilon_L'(\bar{k},\omega) = 1 + \frac{n_f}{n_{ges}}\,(\varepsilon_L(\bar{k},\omega) - 1) \quad (5.6)$$

Mit der Elektronendichte $n_f = n_{ges} - n_b$. Der Fermiimpuls $\hbar k_F$ aus der ursprünglichen DK mit der Elektronendichte $n = n_{ges}$ wird beibehalten. Dies ist sinnvoll, da die Fermikugel durch das schwache Pseudopotential nur wenig verändert wird (H 60). Damit erhalten wir als Gesamt-DK:

$$\varepsilon(\bar{k},\omega) = 1 + \frac{n_f}{n_{ges}} \cdot (\varepsilon_L(\bar{k},\omega,n_{ges}) - 1) + \alpha_{geb}(\bar{k},\omega) \qquad (5.7)$$

Im Anhang ist gezeigt, daß diese Dielektrische Funktion die Kramers-Kronig-Relation und die Summenregel erfüllt.

Wir vernachlässigen jetzt die Dämpfung im Interbandterm ($\Gamma \to o$) und berechnen die Dispersion entsprechend zu (5.3) . Die mit der DK (5.7) bestimmte Dispersion ist für $n_b = 0;\ 0.56;\ 1.06$ in Abb. 5.4 dargestellt. Die Elektronendichte $n_b = 0$ entspricht der Lindhard DK. Die beiden anderen Elektronendichten wurden nach folgenden Oberlegungen gewählt:

Ashcroft und Sturm (AS 71) erhalten für die optische Masse in Aluminium

$$m_{opt} = 1.55 \qquad (5.9)$$

Aus der Summenregel für die transversale Leitfähigkeit $\sigma(\omega)$ erhalten sie (a.a.O. S.1907):

$$\frac{\pi}{2} n_{ges}\, e^2/m_{opt} + \frac{\pi}{2} n_b\, e^2/m = \frac{\pi}{2} n_{ges}\, e^2/m \qquad (5.10)$$

Hieraus erhält man mit (5.9) einen Wert für die Dichte der gebundenen Elektronen zu $n_b = 1.06$. Der Wert $n_b = 0.56$ wurde frei gewählt, um den Einfluß der unterschiedlichen Oszillatorstärke $\omega^2_{geb}(n_b)$ zu zeigen.

Mit zunehmendem Anteil von gebundenen Elektronen wird die Plasmonenergie bei k = 0 zu höheren Energien verschoben. Dieser Unterschied zur Lindhard DK wird jedoch mit zunehmendem k geringer. Qualitativ gibt die Berücksichtigung eines niederenergetischen Interbandübergangs die experimentellen Ergebnisse richtig wieder.

Für eine genauere Berechnung der Auswirkungen des Ionengitters auf die Plasmondispersion müßte man mehr als einen Pseudopotentialkoeffizienten U berücksichtigen. Dies ist bei Sturm für K = 0 (S 77) und bei Bross (B 78) für $K < 1{,}3\ A^{-1}$ geschehen.

Sturm berücksichtigt 112 reziproke Gittervektoren und erhält unter Einschluß der Rumpfpolarisierbarkeit eine sehr gute Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert von $\hbar\omega_p(0)$ (S 77). Die Ergebnisse der Dispersionsrechnungen sind leider nur als Differenzen für verschiedene $\vec{k}$ -Richtungen angegeben, um einen Vergleich zur experimentell gefundenen Plasmonanisotropie zu geben.

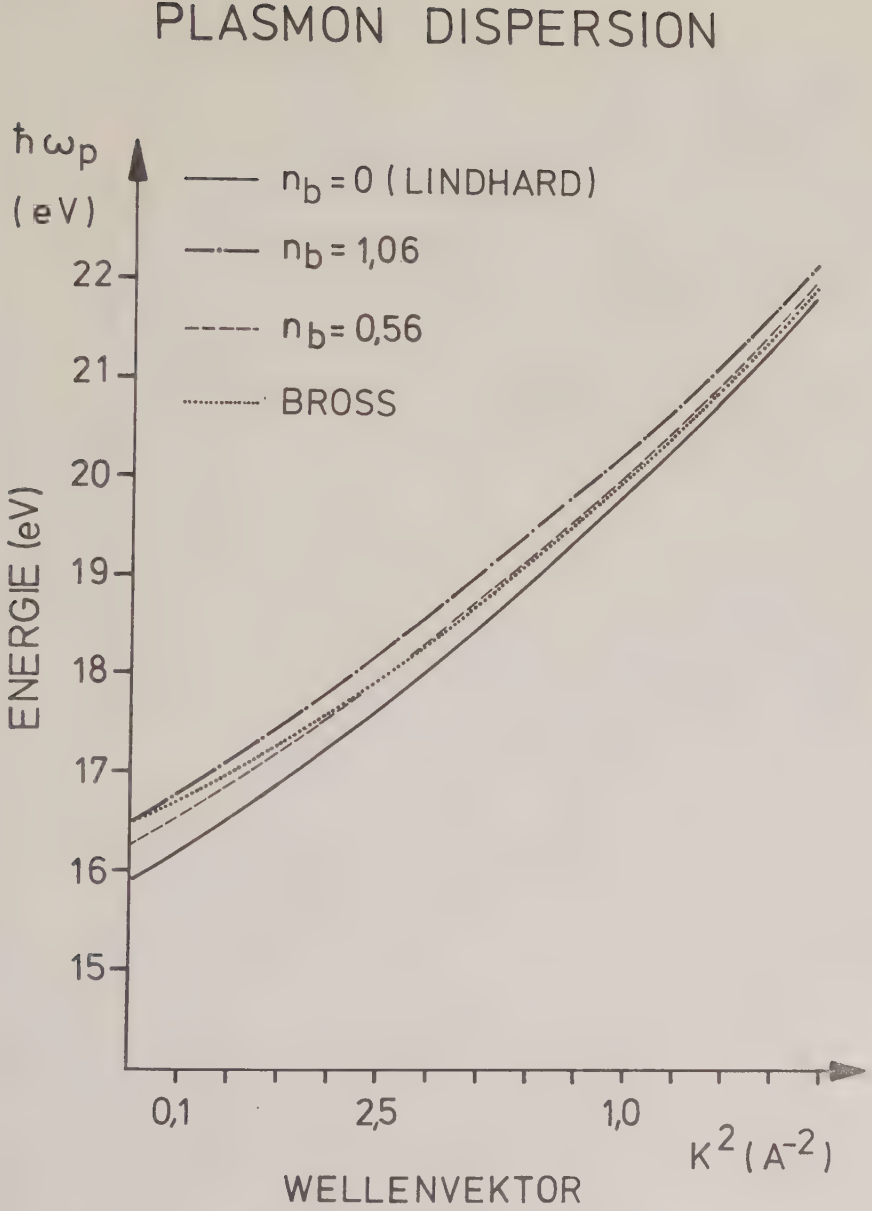


Abb. 5.4 : Modellrechnungen und Pseudopotentialrechnung (Bross, B 79) zur Plasmondispersion in Al.

Bross berechnet $\hbar\omega_p(k)$ mit 14 reziproken Gittervektoren. Die Rumpfpolarisierbarkeit wird nicht berücksichtigt. Eine Austausch- und Korrelationskorrektur (vergl. Abschnitt 2.2) mit statischer Funktion $G(\bar{k})$ führt zu einer stärkeren Krümmung der Dispersionkurve gegenüber der Dispersion gemäß der Lindhard DK.

Ein Vergleich mit dem Experiment (Abb. 4.2) zeigt, daß eine quantitative Beschreibung der Plasmondispersion in Obereinstimmung mit den Meßwerten noch nicht erreicht ist.

6. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden zum ersten Mal Elektronen-Energie-Verlustmessungen der Dispersion $\hbar\omega_p(k)$ des Volumenplasmons in Aluminium-Magnesium-Legierungen vorgestellt. Ausgangspunkt waren die bekannten Ergebnisse der Plasmondispersion in reinem Aluminium, die keine einfache quadratische k-Abhängigkeit für $k < 1\text{Å}^{-1}$ zeigen. Es sollte geklärt werden, ob dies ein genereller Effekt des Freien Elektronengases sei oder ein substanzspezifischer Interbandeffekt.

Die Dispersionsmessungen zeigen für die verschiedenen Legierungen unterschiedlicher Mg-Konzentration eine verschieden starke Abweichung Δ von der quadratischen Dispersion. Dies ist korreliert mit dem Auftreten von niederenergetischen Interbandübergängen. Gerade dort, wo die Abweichung Δ groß ist, in reinem Al und Mg, findet man in den Reflexionsspektren jeweils Strukturen, die von Interbandübergängen herrühren.

Die Dispersionskoeffizienten α_H für $K \geq 0.5\ \text{Å}^{-1}$ verhalten sich zueinander wie für ein Freies Elektronengas berechnet. Für die Dispersionskoeffizienten α_L bei kleinen K ist dies nicht der Fall.

Eine Berechnung der Plasmondispersion nach der Lindhard DK unter Berücksichtigung eines niederenergetischen Interbandüberganges bestätigt qualitativ die Vorstellung, daß Interbandübergänge die Dispersion bei kleinen K beeinflussen.

Bei einem Vergleich der experimentell bestimmten Dispersionskoeffizienten α mit theoretischen Werten muß man dies berücksichtigen.

Anhang

Kramers-Kronig-Relation und Summenregel

Für einen sinnvollen Ansatz der Dielektrischen Funktion eines Systems müssen die Kramers-Kronig-Relation (KKR):

$$\mathrm{Re}\ \varepsilon(\bar{k},\omega) - 1 = \frac{2}{\pi} P\int_0^\infty \mathrm{Im}\ \varepsilon(\bar{k},\omega') \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \qquad (1)$$

und die Summenregel (SR):

$$\int_0^\infty \omega\ \mathrm{Im}\ \varepsilon(\bar{k},\omega)d\omega = \frac{\pi}{2}\omega_p^2 \qquad (2)$$

erfüllt sein. Hier bedeutet $P\int_0^\infty$ den Hauptwert des Integrals. Die KKR ist eine direkte Folge der Forderung nach der Kausalität im Ablauf eines Systems[1] und bedeutet hier, daß durch $\varepsilon-1 = \alpha$ keine Polarisation $P = \alpha \cdot E$ ungleich Null beschrieben werden darf, bevor nicht ein verursachendes Feld E vorliegt.

Die SR (2) drückt aus, daß die Summe aller Anregungen der Elektronen, beschrieben durch den Imaginärteil der DK, mit der Gesamtzahl der vorhandenen Elektronen verknüpft ist.

Beide Beziehungen müssen für ein reales physikalisches System gelten. Eine detaillierte Diskussion ist bei Martin[2] zu finden.

---

1 J.S. Toll, Phys.Rev. 104, 1760 (1956)

2 P.C. Martin, Phys.Rev. 161, 143 (1967)

Es wird zuerst gezeigt, daß die KKR für die Modell-DK aus Abschnitt 5.3 gilt.

A. Kramers-Kronig-Relation

Es ist zu zeigen:

$$\text{Re } \varepsilon(\bar{k},\omega) - 1 \quad = \quad \frac{2}{\pi} \; P\int_0^\infty \text{Im } \varepsilon(\bar{k},\omega') \, \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \tag{3}$$

mit der DK aus Abschnitt 5.3

$$\varepsilon(\bar{k},\omega) \quad = \quad \varepsilon_L'(\bar{k},\omega) \quad + \quad \alpha_{geb}(\bar{k},\omega) \tag{4}$$

hierin ist

$$\varepsilon_L'(\bar{k},\omega) \quad = \quad 1 \quad + \quad \frac{n_{ges} - n_b}{n_{ges}} \quad (\; \varepsilon_L(\bar{k},\omega) - 1 \;) \tag{5}$$

$\varepsilon_L(\bar{k},\omega)$ ist die Lindhard DK für ein homogenes Elektronengas der Dichte n_{ges} und $\alpha_{geb}(\bar{k},\omega)$ die Polarisierbarkeit gebundener Elektronen.

$$\alpha_{geb}(\bar{k},\omega) \quad = \quad \frac{\omega_{geb}^2}{(\; \omega_0^2(\bar{k}) - \omega^2) - i\Gamma\omega} \tag{6}$$

Γ beschreibt die Dämpfung und $\omega_0(k)$ die Eigenfrequenz der Elektronen.

Sowohl Re und Im wie $P\int_0^\infty$ sind lineare Operationen, so daß sich Gleichung (3) zu zwei Teilaufgaben vereinfacht:

$$\text{Re } \varepsilon_L'(\bar{k},\omega) - 1 = \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \text{Im } \varepsilon_L'(\bar{k},\omega') \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \qquad (7)$$

$$\text{Re } \alpha_{geb}(\bar{k},\omega) = \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \text{Im } \alpha_{geb}(\bar{k},\omega') \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \qquad (8)$$

Für den Beweis von Gl. (8) siehe Wooten[3].

Es bleibt zu zeigen Gl. (7). Wir benutzen die KKR für die Lindhard DK $\varepsilon_L(\bar{k},\omega)$ [4]

$$\text{Re } \varepsilon_L(\bar{k},\omega) - 1 = \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \text{Im } \varepsilon_L(\bar{k},\omega') \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \qquad (9)$$

wir setzen die DK Gl.(5) rechts in (7) ein und erhalten:

$$RS = \frac{n_{ges} - n_b}{n_{ges}} \frac{2}{\pi} P \int_0^\infty \text{Im}\varepsilon_L(\bar{k},\omega') \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \qquad (10)$$

wegen Gl. (9) ergibt sich

$$RS = \frac{n_{ges} - n_b}{n_{ges}} \frac{2}{\pi} (\text{Re } \varepsilon_L(\bar{k},\omega) - 1) \qquad (11)$$

mit Gl. (5) haben wir:

---

3 F. Wooten, Optical Properties of Solids, Academic Press New York 1972

4 J. Lindhard, Kgl. Danske Vienskab. Selskab, Mat.-fys. Medd. 28, 8 (1954)

$$RS = \mathrm{Re}\,\varepsilon'_L(\bar{k},\omega) - 1 \qquad (12)$$

Damit ist die KKR für $\varepsilon'_L(\bar{k},\omega)$ gezeigt. Insgesamt ist also die KKR für die Dielektrische Funktion $\varepsilon(k,\omega)$ erfüllt.

B. Summenregel

Es ist zu zeigen:

$$\frac{\pi}{2}\,\omega_p^2 = 2\pi^2\, n_{ges}\, e^2/m = \int_0^\infty \omega\,\mathrm{Im}\,\varepsilon(\bar{k},\omega)\,d\omega \qquad (13)$$

$$= \int \omega\,\mathrm{Im}\varepsilon(\bar{k},\omega)\,d\omega + \int_0^\infty \omega\,\mathrm{Im}\,\alpha_{geb}(\bar{k},\omega)\,d\omega \qquad (14)$$

$$=: I1 \qquad\qquad =: I2$$

Das Integral I2 in (14) ergibt nach Wooten[3]

$$I2 = 2\pi^2 n_b\, e^2/m \qquad (15)$$

Um den Wert für das Integral I1 zu erhalten, benutzen wir die Summenregel für die Lindhard DK [4]

$$\int_0^\infty \omega\,\mathrm{Im}\varepsilon_L(\bar{k},\omega,n_{ges})d = 2\pi^2 n_{ges}\, e^2/m \qquad (16)$$

damit erhalten wir für I1

$$\int_0^\infty \omega \, \mathrm{Im}\varepsilon_L(\bar{k},\omega)d\omega = \frac{n_{ges}-n_b}{n_{ges}} \int_0^\infty \omega \, \mathrm{Im}\varepsilon_L(\bar{k},\omega,n_{ges})d\omega \tag{17}$$

$$= \frac{n_{ges}-n_b}{n_{ges}} \; 2\pi^2 n_{ges} \; e^2/m \tag{18}$$

$$I1 = 2\pi^2 n_{ges} \; e^2/m - 2\pi^2 n_b \; e^2/m \tag{19}$$

Aus (15) und (19) ergibt sich das gewünschte Ergebnis:

$$I1 + I2 = 2\pi^2 n_{ges} \; e^2/m = \frac{\pi}{2} \omega_p^2 \tag{20}$$

Damit erfüllt die Dielektrische Funktion $\varepsilon(\bar{k},\omega)$ (Gl.(4)) die Summenregel.

Literaturverzeichnis

AIRD 78	R. Asokamani, k. Iyakutti, R.S. Rao, V. Deviathan, J. Phys. F 8, 2323 (1978)
AS 71	N. W. Ashcroft, K. Sturm, Phys. Rev. B 3, 1898 (1971)
B 78	H. Bross, J. Phys. F 8, 2631 (1978)
DBL 79	J.T. Devreese, F. Brosens, L.F. Lemmens, Phys. Stat. Sol. 91, 349 (1979)
DFRZ 70	J. Daniels, C.v.Festenberg, H. Raether, K. Zeppenfeld, Springer Tracts in Modern Physics 54, 77 (1970)
DSR 71	A. Daudé, A. Savary, S. Robin, J. Opt. Soc.Am. 62, 1 (1971)
E 52	E.C. Ellwood, J. Inst. Met. 80, 605 (1952)
EC 59	H. Ehrenreich, M.H. Cohen, Phys. Rev. 115, 786 (1959)
EPS 63	H. Ehrenreich, H.R. Philipp, B. Segall, Phys. Rev. 132, 1918 (1963)
FP 55	H. Fröhlich, H. Pelzer, Proc. Phys. Soc. A 68, 525 (1955)
G 68	J.Geiger, Elektronen und Festkörper, Sammlung Vieweg, Bd. 128 Braunschweig 1968
G 72	E. Gray, Ed. American Institute of Physics Handbook, McGraw Hill New York 1972
GAWH 73	T.F. Gesell, E.T. Arakawa, M.W. Williams, R.N. Hamm, Phys. Rev. B 7, (5141 (1973)
GF 59	A. Glick, R.A. Ferrell, Am.Phys. 11, 359 (1959)
GL 67	R.H.W. Graves, A.P. Lenham, J. Opt. Soc. Am. 58, 126 (1967)
GRS 75	P.C. Gibbons, J.J. Ritsko, S.E. Schnatterly, Rev. Sci. Instrum. 46, 1546 (1975)
GSRF 76	P.C. Gibbons, S.E. Schnatterly, J.J. Ritsko, J.R. Fields, Phys. Rev. B 13, 2451 (1976)
H 55	J. Hubbard, Proc. Phys. Soc. A 68, 411 (1955)

H 57	V. Heine, Proc. Roy. Soc. A 240, 340 (1957)
Hu 57	J. Hubbard Proc. Roy. Soc. A 243, 336 (1957)
H 58	M.H. Hansen, Constitution of Binary Alloys, McGraw Hill New York 1958
Ho 58	L. Holland, Vacuum Deposition of Thin Films, John Wiley New York 1958
H 65	L. Hedin, Phys. Rev. 139, 796 (1965)
H 66	W.A. Harrisson, Phys.Rev. 147, 467 (1966)
H 75	H.J. Höhberger, Dissertation München 1975
HCW 70	V. Heine, M.L. Cohen, D. Weaire, Sol. Stat. Phys. 24, 1 (1970)
HEWD 72	G. Gibbert, J.W. Eddington, D.B. Williams, P. Doig,
HH 73	D. Hacman, W. Heitmann, Appl. Opt. 12, 895 (1973)
HL 71	L. Hedin, B.I. Lundqvist, J. Phys. C 4, 2064 (1971)
HS 48	L. Harris, B.M. Siegel, J. Appl. Phys. 19, 739 (1948)
HS 70	B.M. Hartley, J.B. Swan, Aust. J. Phys. 23, 655 (1970)
JOP 71	R. Jones, C.J. Oliver, E.R. Pike, Appl. Opt. 10, 1673 (1971)
K 73	T. Kloos, Z. Phys. 265, 225 (1973)
K 75	A.A. Kugler, J. Stat. Phys. 12, 35 (1975)
K 78	K.J. Krane, J. Phys. F 8, 2133 (1978)
KS 62	O. Klemperer, J.P.G. Shepherd, Brit. J. Appl. Phys. 14, 89 (1962)
KS 66	J.B. Ketterson, R.W. Stark, Phys. Rev. 156, 748 (1966)
L 54	J. Lindhard, Kgl. Danske Vienskab. Selskab, Mat.-fys. Medd. 28, 8 (1954)

LCC 75	S.G. Louie, J.R. Chelikowsky, M.L. Cohen, Phys. Rev. Lett. 34, 155 (1975)
M 80	H. Möller, A. Otto, Sol. Stat. Comm. im Druck
M 65	L. I. Maissel, R. Glang, Handbook of Thin Film Technology, McGraw-Hill, New York 1965
MM 72	A.G. Mathewson, H.P. Myers, J. Phys. F 2, 403 (1972)
OS 75	A. Otto, W. Sohler, Sol. Stat. Comm. 16, 1319 (1975)
P 58	W.B. Pearson, A Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals and Alloys, Pergamon Press, New York 1958
Ph 58	J.C. Phillips, Phys. Rev. 112, 685 (1958)
P 60	J.C. Powell, Aust. J. Phys. 13, 145 (1960)
P 64	D. Pines, Elementary Excitations in Solids, W.A. Benjamin Inc. New York 1964
P 66	J.C. Phillips, Sol. Stat. Phys. 18, 55 (1966)
P 69	J.C. Powell, J. Opt. Soc. Am. 60, 78 (1969)
P 77	E. Petri, Dissertation München 1977
PDR 67	M. Priol, A. Daudé, S. Robin, C.R. Acad. Scien. 264 B, 935 (1967)
PK 59	J.C. Phillips, L. Kleinman, Phys. Rev. 116,287 (1959)
PO 75	E. Petri, A. Otto, Phys. Rev. Lett. 34, 1283 (1975)
PPE 74	K.C. Pandey, P.M. Platzmann, P. Eisenberger, E-Ni Foo, Phys. Rev. B 9, 5046 (1974)
PW 73	P.M. Platzman, P.A. Wolff, Waves and Interactions in Solid State Plasmas, Academic Press New York 1973
R 65	H. Raether, Springer Tracts in Modern Physics, 38, 85 (1965)
R 80	H. Raether, Springer Tracts in Modern Physics, 88, 1 (1980)
S 28	A. Sommerfeld, Z. Physik 47, 1 (1928)

S 70 R.W. Shâw, J. Phys. C 3 1140 (1970)

S 76 K. Sturm, Z. Physik B 25, 247 (1976)

S 77 K. Sturm, Z. Physik B 28, 1 (1977)

S 78a K. Sturm, Sol. Stat. Comm. 25, 797 (1978)

S 78b K. Sturm, Sol. Stat. Comm. 27, 645 (1978)

S 78c K. Sturm, Z. Physik B 29, 27 (1978)

S 79 S.E. Schnatterly, Sol. Stat. Phys. 34, 275 (1979)

S 80 Das Rechenprogramm wurde von Dr. K. Syassen zur Verfügung gestellt

SA 74 K. Sturm, N.W. Ashcroft, Phys. Rev. B 10 1343 (1974)

SM 68 D.R. Spalding, A.J.F. Metherell, Phil. Mag. 18, 41 (1968)

STLS 68 K. Singwi, M.P. Tosi, R.H. Land, A. Sjölander, Phys. Rev. 176, 589 (1968)

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand in den Jahren 1977 bis 1980 am Institut für Experimentalphysik, Lehrstuhl III, der Universität Düsseldorf.

Herrn Prof. Dr. A. Otto gilt mein besonderer Dank für die Anregung und großzügige Förderung der Arbeit.

Den Mitgliedern des Lehrstuhls III, insbesondere Herrn Dr. K. Syassen, danke ich für gute Zusammenarbeit.

Herrn Dr. K. Sturm danke ich für wertvolle Diskussionen und Hinweise.

Lebenslauf

Persönliche Daten:	Name:	Henning Möller
	Beruf:	Diplom-Physiker
	Geboren:	16.3.1948 Timmendorfer Strand
Schulbildung:	1954	Volksschule Friedrichstadt/Eider
	1965	Realschulabschluß
	1968	Abitur, Oberschule Niebüll
Wehrdienst:	1968 - 1970	bei der Bundesmarine
Studium:	1970	Physikstudium, Universität Hamburg
	1975	Diplomarbeit am DESY Hamburg, Thema: Fluoreszenz von festen Edelgasen
		Nebenfach: Angewandte Mathematik
	1976	Diplomprüfung
Berufstätigkeit:	März 1977	Wissenschaftlicher Angestellter der Univ. Düsseldorf am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart.
	September 1977	Wissenschaftl. Angest. am neuen Lehrstuhl III für Experimentalphysik der Univ. Düsseldorf, Elektronen-Spektroskopie an Legierungen.

Druck: D. Gräbner, 8602 Altendorf - Tel. 09545/8791